



Développement de calorimètres métalliques magnétiques pour le spectrométrie bêta

Cindy Le-Bret Le Bret

► To cite this version:

Cindy Le-Bret Le Bret. Développement de calorimètres métalliques magnétiques pour le spectrométrie bêta. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Paris Sud - Paris XI, 2012. Français. NNT : 2012PA112149 . tel-00740438

HAL Id: tel-00740438

<https://theses.hal.science/tel-00740438>

Submitted on 10 Oct 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Développement de Calorimètres Métalliques Magnétiques pour la Spectrométrie Bêta

2 octobre 2012

Auteur : Cindy LE-BRET

Encadrant :
Martin LOIDL

Directeur de thèse :
Philippe CASSETTE

**Laboratoire National
Henri Becquerel**

LABORATOIRE DE MESURE DE L'ACTIVITÉ
PÔLE BOLOMÉTRIE

Directeur de laboratoire :
Thierry BRANGER

Directeur du département :
Loïc DE CARLAN

ABSTRACT

The aim of this thesis is to demonstrate the potential of metallic magnetic calorimeters for β spectrometry by measuring the spectrum of ^{63}Ni . This nuclide is one of the beta emitters for which theory is well-known and calculation reliable. We propose a method for experimental observation, especially at low energies, which allows to validate the theoretical calculation. A dedicated data analysis has been established and optimized. It takes into account the parameters of a cryogenic measurement and also the specific requirements of β spectrometry. Two types of sources have been realized, a deposit of nickel salt from a dried drop of a solution of NiCl_2 and a metallic electroplated source of Ni. The electroplated sources turn out to be the appropriate type of source for ^{63}Ni spectrometry. The performances of metallic magnetic calorimeters, such as high detection efficiency and low energy threshold, lead to results precise enough to validate experimentally the theory.

RÉSUMÉ

L'objectif de ce travail de thèse est de démontrer le potentiel des calorimètres métalliques magnétiques pour la spectrométrie β via une mesure du spectre du ^{63}Ni . Ce nucléide fait partie des émetteurs β pour lesquels la théorie est connue et les calculs crédibles. Nous proposons une méthode d'observation expérimentale du spectre, à basse énergie surtout, permettant de valider les calculs théoriques. Un traitement des données spécifique à l'établissement d'un spectre continu a été établi et optimisé, prenant en compte les paramètres d'une mesure cryogénique avec un calorimètre métallique magnétique et les exigences de la spectrométrie β . Deux types de sources ont été réalisés, un dépôt sous forme de sel de nickel à partir d'une goutte séchée de solution de NiCl_2 et un dépôt métallique de nickel issu d'une électrodéposition. Les sources électrodéposées se sont révélées être le type de source adéquate pour la spectrométrie du ^{63}Ni . Les performances des calorimètres métalliques magnétiques, parmi lesquelles le fort rendement de détection ou le faible seuil en énergie, permettent d'obtenir des résultats suffisamment précis pour la validation expérimentale des calculs théoriques.

TABLE DES MATIÈRES

1	INTRODUCTION	1
1.1	Motivation	1
1.2	Le rayonnement incident à l'origine d'une variation de température au sein d'un métal	1
1.2.1	Les différents types d'interactions rayonnement-matière	2
1.2.2	Phénomène de production de chaleur dans un métal	5
1.3	Détecteurs bêta usuels	7
1.3.1	Les détecteurs pour la métrologie de l'activité des émetteurs β	8
1.3.2	Les détecteurs pour la spectrométrie β	10
1.4	Détecteurs cryogéniques	12
1.4.1	Les senseurs à dissociation de paires	13
1.4.2	Les senseurs thermiques	14
2	LA DÉCROISSANCE BÊTA	17
2.1	Cadre théorique	17
2.2	Calculs de spectres en énergie	18
2.2.1	Première approche théorique de l'établissement d'un spectre β	18
2.2.2	L'effet du champ coulombien du noyau fils	22
2.2.3	Effet de la taille du noyau, effet d'écrantage et corrections radiatives	23
2.2.4	L'effet d'échange entre l'électron émis et un électron de l'atome fils	24
2.2.5	Conclusion : l'expression complète d'un spectre β	25
2.3	Le code de calcul utilisé : Betashape	26
2.4	La décroissance β du ^{63}Ni	27
3	MESURE AVEC DES CALORIMÈTRES MÉTALLIQUES MAGNÉTIQUES (MMC)	29
3.1	Le principe physique des MMC	29
3.1.1	L'absorbeur	31
3.1.2	Le senseur	32
3.2	La lecture des MMC avec un dc-SQUID	35
3.2.1	La jonction Josephson	36
3.2.2	L'électronique à SQUID	36
3.3	Les différents bruits inhérents aux MMC	40
3.3.1	Les fluctuations thermodynamiques	40
3.3.2	Le bruit Johnson magnétique	40
3.3.3	Le bruit du SQUID	41
3.4	Le réfrigérateur à dilution	43

4	LE DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET L'ANALYSE DES DONNÉES	46
4.1	Les dispositifs expérimentaux	46
4.1.1	Le couplage magnétique indirect via l'utilisation d'un transformateur de flux	46
4.1.2	Le couplage magnétique direct	50
4.1.3	Le dispositif expérimental utilisé	51
4.2	Des données brutes au spectre bêta : le traitement du signal	56
4.2.1	De l'acquisition des données à l'établissement d'un spectre β	56
4.2.2	Vérification de la linéarité du détecteur	59
4.2.3	Effet de la dérive en température	63
4.2.4	Effet de la non-homogénéité des impulsions	65
5	RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX	67
5.1	Résultats obtenus à partir de sources de dépôts séchés	67
5.1.1	Premier spectre obtenu : MD6	68
5.1.2	Influence de l'hétérogénéité des sources séchées : MD7	69
5.1.3	Influence de l'épaisseur du dépôt : MD8	70
5.1.4	Influence de l'environnement : MD11	72
5.1.5	Discussion sur la résolution en énergie de la raie d'étalonnage	73
5.1.6	Influence de la qualité de la source pour une mesure du spectre du ^{241}Pu	76
5.2	Résultats à partir de sources électrodéposées et impact pour la métrologie	80
5.2.1	Premier résultat avec une source électrodéposée : MD12	83
5.2.2	Test de reproductibilité de l'électrodéposition : MD14	87
5.2.3	Impact de l'effet d'échange sur la métrologie de l'activité : exemple de la mesure de l'activité du ^{63}Ni en scintillation liquide	88
6	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	90
6.1	Conclusions et Perspectives	90
I	APPENDIX	93
.1	Traitement des données	94
.1.1	Filtrage	94
.1.2	Fonctionnalité du programme utilisé et confrontation avec un autre type de traitement	97
.2	Le dispositif de mesure développé pour la spectrométrie β	100

.2.1	Des exigences différentes pour la spectrométrie β par rapport à la spectrométrie X	100
.2.2	Le premier montage utilisé	101
.2.3	Le dispositif de mesure dédié à la spectrométrie β	102
.3	Caractérisation d'un méandre	108

BIBLIOGRAPHIE	111
---------------	-----

INTRODUCTION

1.1 MOTIVATION

La radioactivité β est sans doute la forme de radioactivité qui a suscité le plus d'interrogations, et amené de nombreuses découvertes, comme le prédisait Niels Bohr au début des années 1930 : *"One should be prepared for further surprises with β decay"*.

En effet, les premières observations de spectres bêta, continus, ont permis à Pauli de postuler en 1931 l'existence d'une particule de masse nulle émise lors du rayonnement β : le neutrino. De plus, la décroissance bêta, seule interaction faible mesurable dans la première moitié du XX^{ème} siècle, a mis en évidence la non conservation de la conjugaison de la charge et de la parité pour les interactions faibles.

La connaissance précise du spectre en énergie des émetteurs β est primordiale dans l'industrie nucléaire pour le calcul de la chaleur résiduelle du combustible nucléaire après l'arrêt du réacteur ou encore dans le domaine de la curiethérapie pour le calcul des doses induites aux patients. Dans le domaine de la métrologie des rayonnements ionisants également, les spectres bêta sont nécessaires pour le calcul de rendement de détection de certains détecteurs tels que les compteurs à scintillation liquide.

Pour répondre à la demande des utilisateurs, il faut à la fois calculer et mesurer les spectres β d'intérêt. Les calculs sont nécessaires car il est impossible de mesurer toutes les décroissances β de tous les noyaux, certains ayant une durée de vie trop courte. Mais les expériences sont indispensables car les calculs doivent être contraints et validés par les mesures.

1.2 LE RAYONNEMENT INCIDENT À L'ORIGINE D'UNE VARIATION DE TEMPÉRATURE AU SEIN D'UN MÉTAL

Dans ce paragraphe seront exposés les différents types d'interaction rayonnement-matière qui nous intéressent dans le contexte de ce travail, celles des électrons et des photons, ainsi que les processus qui conduisent de l'interaction d'une particule à l'élévation de température dans un métal à basse température.

1.2.1 Les différents types d'interactions rayonnement-matière

1.2.1.1 Interaction photon matière

Les interactions entre des photons et de la matière sont de plusieurs types (fig.1) ; la probabilité intrinsèque de chaque interaction, reliée à la section efficace, est fonction de l'énergie du photon et du numéro atomique de la cible (fig.2).

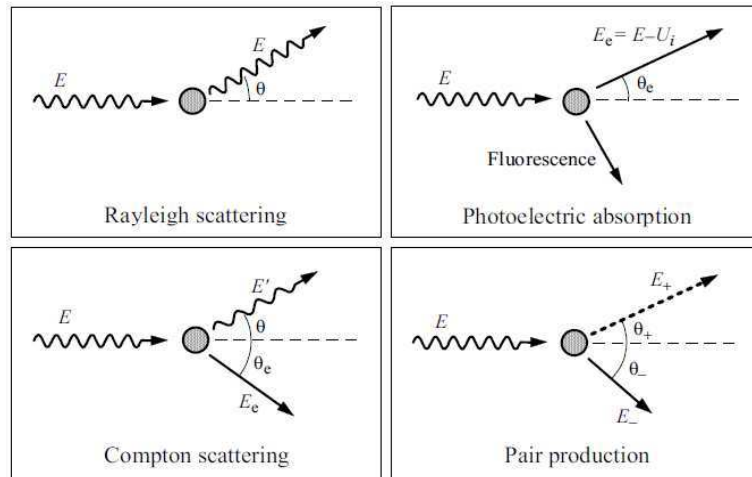


FIGURE 1: Les différentes interactions photon/matière possibles.

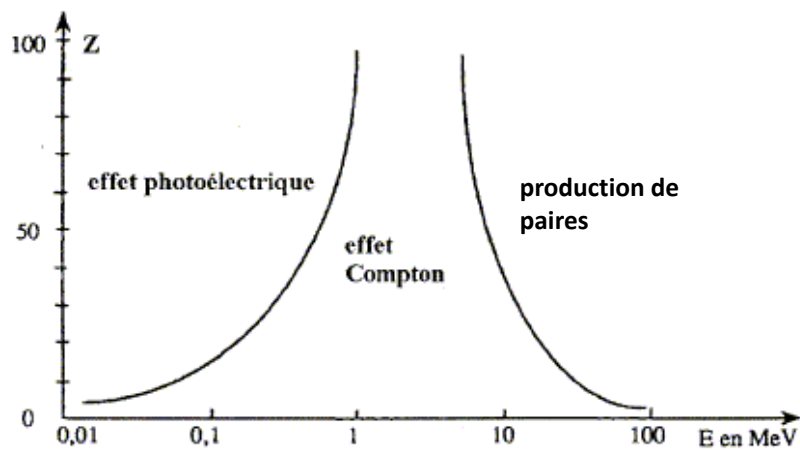


FIGURE 2: Domaines de prédominance des différents types d'interactions entre les photons et la matière en fonction du numéro atomique de la matière et de l'énergie des photons.

Nous nous intéressons ici à l'interaction des photons avec la matière car nous utilisons une source photonique pour l'étalonnage en énergie de nos détecteurs β . Cela est rendu possible par le fait que le transfert d'énergie par les photons se fait par l'intermédiaire d'électrons, ce qui justifie leur utilisation pour étalonner nos détecteurs.

Lors de la diffusion Rayleigh, le photon interagissant avec la matière est dévié sans perte d'énergie ; raison pour laquelle cette interaction est qualifiée d'élastique.

La production d'une paire électron-positron est due à l'annihilation du photon lors de son interaction avec le noyau de l'atome.

La diffusion Compton correspond à une interaction du photon incident avec le cortège électronique, dans laquelle le photon cède seulement une fraction de son énergie à un électron lié et est dévié de sa trajectoire. L'électron lié qui reçoit cette énergie est éjecté du cortège électronique, il y a ionisation de l'atome, ou il saute d'une orbitale à une autre, il y a excitation de l'atome.

Les énergies photoniques utilisées pour l'étalonnage de nos détecteurs β vont de 5,9 keV à 88 keV dans de l'or ($Z=79$). Des simulations Monte Carlo dans cette gamme d'énergie confirme ce que montre la comparaison des sections efficaces de chaque interaction (fig.3 : aux énergies étudiées, la diffusion Compton est négligeable).

Dans l'or, pour des énergies inférieures à 100 keV, l'effet photoélectrique est l'interaction dominante (fig.3 et 2).

Dans ce type d'interaction, la collision photon incident/électron lié libère l'électron lié, appelé photo-électron, avec une énergie cinétique $E_c = E_0 - E_e$ avec E_0 , l'énergie initiale du photon incident et E_e , l'énergie de liaison de l'électron initialement lié. Le photo-électron cède son énergie à la matière et la lacune résultant de son éjection est comblée par une cascade de réarrangements conduisant à des émissions X ou d'électrons Auger. Le rayonnement X interagit à son tour par effet photoélectrique pour donner lieu à d'autres réarrangements atomiques.

En conséquence, les phénomènes de transfert d'énergie par des photons induisent, *in fine*, des électrons.

1.2.1.2 Interaction électron matière

Comme dans le cas des photons, il y a plusieurs types d'interactions entre les électrons et la matière (fig.4).

La diffusion élastique implique un changement de direction de l'électron incident avec une variation d'énergie cinétique de la particule négligeable.

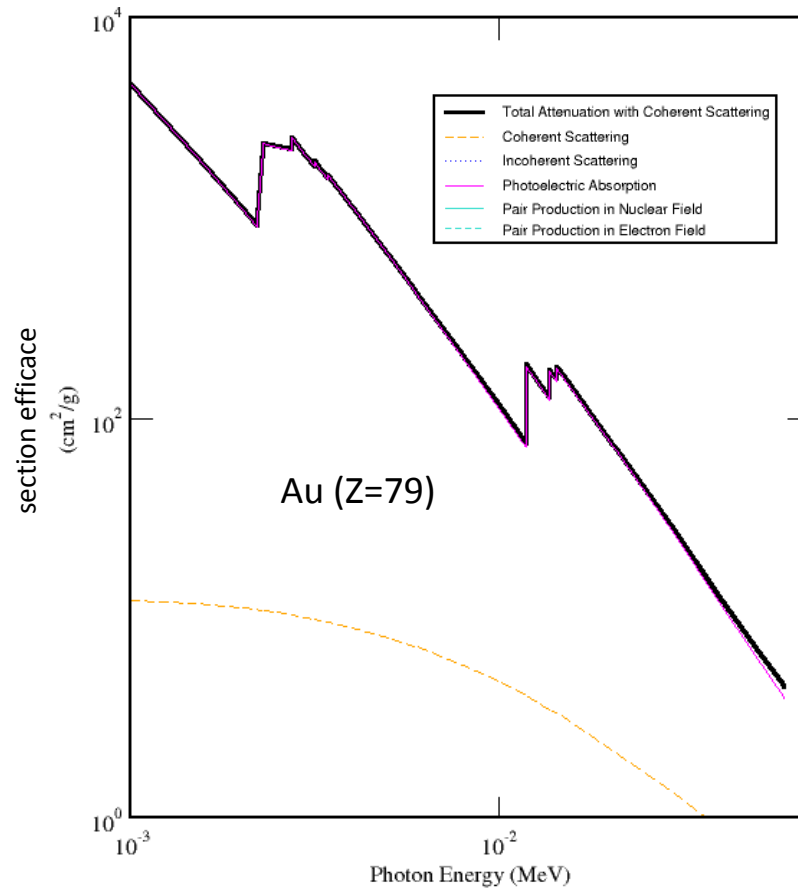


FIGURE 3: Les différentes interactions photon/matière dans la gamme d'énergie allant de 0 à 70 keV, d'après le programme de calcul en ligne du NIST, Xcom.

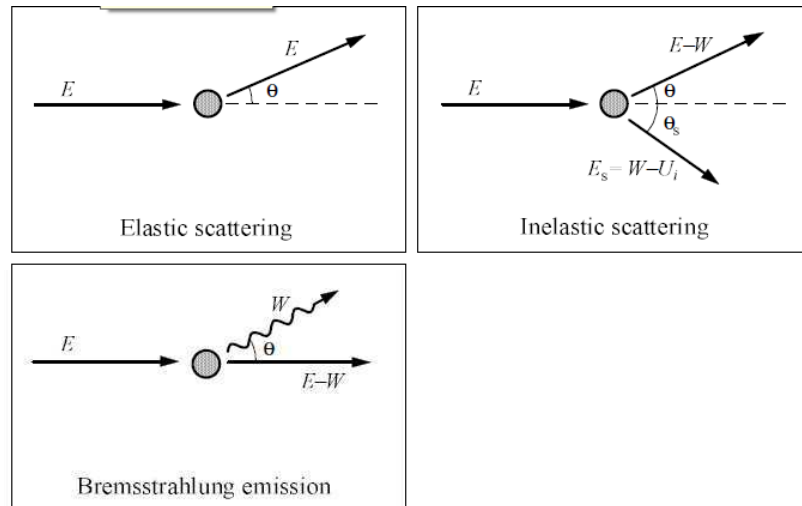


FIGURE 4: Les différentes interactions électron/matière possibles.

Le Bremsstrahlung (ou rayonnement de freinage) résulte d'une interaction électromagnétique entre les électrons et les champs

électriques des noyaux et des électrons atomiques. L'électron incident est freiné sous l'action du champ coulombien. Cette décélération s'accompagne de l'émission d'un rayonnement photonique appelé rayonnement de freinage.

Les interactions inélastiques produisent des excitations ou des ionisations des atomes du milieu, via une interaction électron incident/électron du milieu. L'électron incident transmet alors une partie de son énergie à un électron du milieu.

Dans un milieu de numéro atomique Z , le rapport, r , de la perte d'énergie par rayonnement de freinage par rapport à la perte d'énergie via des interactions inélastiques, pour un électron d'énergie E (en MeV) donné est :

$$r \sim \frac{EZ}{700}$$

Ainsi, dans la gamme d'énergie inférieure à 100 keV, la perte d'énergie due au rayonnement de freinage dans l'or est négligeable devant celle due aux interactions inélastiques ($r \leq 10^{-2}$).

Une simulation Monte Carlo a été faite qui confirme ce calcul : dans nos mesures, le rayonnement de freinage est négligeable.

Que ce soit lors d'une interaction photonique ou électronique, un électron du milieu est mis en mouvement. L'énergie que cet électron, qualifié d'électron primaire par la suite, communique sous forme d'ionisation et d'excitation, se transforme dans le milieu en chaleur selon des processus décrits ci-dessous dans le cas d'un métal.

1.2.2 *Phénomène de production de chaleur dans un métal*

Un métal est constitué d'ions positifs formant un réseau cristallin dans lequel les électrons de conduction sont libres.

Via des interactions électromagnétiques, l'électron primaire transmet son énergie au milieu sous forme d'excitation et d'ionisation et enfin aux électrons de conduction et aux ions : il y a une augmentation de l'agitation thermique des particules du métal. On observe donc une variation de la température du métal.

Ce transfert d'énergie fait intervenir la capacité calorifique, ou thermique, du matériau. Dans un métal, il y a deux contributions à la capacité thermique totale : celle du réseau cristallin et celle des électrons de conduction.

1.2.2.1 *La capacité thermique du réseau cristallin : C_{ph}*

Dans le réseau cristallin, l'agitation thermique due à l'interaction électromagnétique de l'électron avec les ions positifs se propage de proche en proche. On assiste donc à la propagation

d'une onde de vibration dans le réseau. Le phonon permet de quantifier la propagation de cette onde.

Pour un réseau cubique simple, en se plaçant dans le modèle de Debye où les phonons sont considérés comme un gaz de bosons libres, on peut montrer[EHa] que la capacité thermique du réseau cristallin, c'est-à-dire celle des phonons, est :

$$C_{ph} = 9V\alpha^{-3}k_B \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{x_D} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx \quad (1.1)$$

avec $V \sim 10^{-10} \text{ m}^3$, le volume du métal considéré,
 $\alpha = 0,2 \text{ nm}$, la distance typique entre deux atomes d'une maille cristalline cubique simple,
 $k_B \sim 1,4 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1} \sim 8,6 \times 10^{-5} \text{ eV.K}^{-1}$, la constante de Boltzmann,
 T , la température du métal,
 Θ_D , la température de Debye ; pour l'or, $\Theta_D = 170\text{K}$,
 et $x_D = \frac{\hbar\omega_D}{k_B T}$ avec ω_D , la fréquence de Debye, de l'ordre de $2 \times 10^{13} \text{ Hz}$.

Pour $T \rightarrow 0$,

$$C_{ph} = \frac{12\pi^4}{5} V\alpha^{-3}k_B \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 = \beta T^3 \quad (1.2)$$

Bien que ce modèle ne contienne qu'un seul paramètre libre, la température de Debye, il prédit remarquablement bien l'évolution de la capacité thermique des phonons sur une large gamme de température.

1.2.2.2 La capacité thermique des électrons de conduction : $C_{él}$

De manière analogue, en se plaçant dans le modèle de Fermi où les électrons de conduction sont considérés comme un gaz de fermions libres, on peut montrer [EHb] que, pour des températures T tel que $T \ll E_F/k_B$:

$$C_{él} = \frac{\pi^2}{2} \frac{Vn}{E_F} k_B^2 T = \gamma T \quad (1.3)$$

avec E_F , l'énergie de Fermi égale à $k_B T_F$, T_F , étant la température de Fermi caractéristique du métal. La température de Fermi de l'or est de $6,42 \times 10^4 \text{ K}$.

n représente la densité d'électrons de conduction dans le métal, $n = 5,90 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ pour l'or et T , la température du métal.

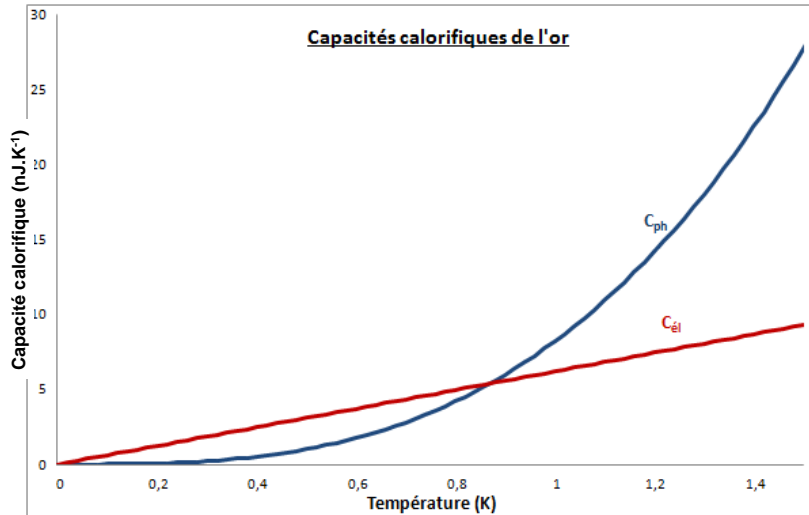


FIGURE 5: Evolution des capacités thermiques des phonons et des électrons de conduction dans l'or en fonction de la température ($\gamma \sim 6,2 * 10^{-9} \text{ J.K}^{-2}$ et $\beta \sim 8,2 * 10^{-9} \text{ J.K}^4$).

1.2.2.3 La capacité thermique totale de l'or $C = C_{ph} + C_{el}$

Comme nous le verrons par la suite, nous travaillons à des températures de l'ordre de la dizaine de mK. A cette température, comme le montre la figure 5, la capacité thermique totale de l'or, $C = C_{el} + C_{ph}$ est dominée très largement par la capacité thermique des électrons de conduction (différence de trois ordres de grandeur).

Dans la suite, la capacité calorifique des phonons est donc considérée comme négligeable.

Lors de chaque interaction rayonnement-matière, de l'énergie est fournie au matériau ce qui augmente l'agitation des particules le constituant. Cette chaleur se diffuse dans le métal, essentiellement via les électrons de conduction et on observe une variation de température du métal. Mesurer cette variation de température permet donc de mesurer l'énergie cinétique de la particule incidente.

1.3 DÉTECTEURS BÊTA USUELS

Les premiers instruments utilisés pour la détection des rayonnements nucléaires étaient essentiellement basés sur les effets photographiques, d'ionisation et de scintillation. Parmi les détecteurs pionniers, on peut citer l'écran fluorescent, la plaque photographique, l'électroscope à feuille d'or [Spi38] et la chambre d'ionisation associée à un électroscope ou un galvanomètre.

Le premier instrument capable de détecter des particules isolées a été le spinthariscopes, du grec "spintharis" signifiant "étincelle", inventé par Crookes en 1903 [KdHo4]. Pour l'anecdote, le spinthariscopes est devenu pendant un temps le must-have pour les aristocrates et les gens de la haute société voulant se prévaloir d'une connaissance scientifique.

Le détecteur à utiliser est déterminé par l'objet de l'étude. Actuellement, en métrologie de l'activité d'un émetteur bêta, on utilise préférentiellement un compteur à scintillation liquide ou un compteur proportionnel à gaz. En revanche, pour une mesure dont le but est la détermination de la forme du spectre bêta, on utilisait beaucoup les spectromètres magnétiques ou électrostatiques de plus en plus remplacés par les détecteurs à semi-conducteurs [BS76].

1.3.1 Les détecteurs pour la métrologie de l'activité des émetteurs β

1.3.1.1 Le compteur proportionnel à gaz

Le principe d'un compteur proportionnel à gaz est d'utiliser les électrons ou les ions, résultant des interactions dans le gaz de la particule incidente, pour générer un signal électrique. Le gaz est placé pour cela dans un champ électrique élevé qui permet la collecte de ces charges et leur multiplication grâce à des ionisations secondaires. En effet, soumis à un champ électrique, les électrons issus de la première ionisation vont être accélérés et vont pouvoir interagir créant alors une seconde ionisation. Le second électron va lui aussi être accéléré et ainsi de suite. Ce processus de multiplication des charges est connu sous le nom d'*avalanche de Townsend*. L'augmentation du nombre d'électrons, n , par unité de distance, dx , suit l'équation de Townsend :

$$\frac{dn}{n} = \alpha dx$$

avec α , le premier coefficient de Townsend dépendant en particulier du champ électrique appliqué. Cette cascade d'électrons n'a lieu que pour un champ électrique appliqué supérieur à un seuil. Ce seuil correspond à l'énergie cinétique minimale à fournir à un électron (via la force du champ électrique) pour qu'il atteigne une énergie supérieure à l'énergie d'ionisation de la molécule de gaz, de l'ordre de 30 eV.

Cette énergie d'ionisation est donc la limite théorique de la résolution en énergie pour une mesure avec ce type de détecteur. En pratique, la résolution en énergie est limitée par la fluctuation statistique sur le nombre d'électrons créés.

Lorsque la source radioactive est placée dans le compteur, l'angle solide de 4π sr permet un haut rendement de détection même pour des sources de rayonnement de faible énergie.

1.3.1.2 Les compteurs à scintillation liquide

Le principe de la scintillation liquide repose sur l'interaction d'un rayonnement avec un liquide, constitué de molécules scintillantes diluées dans un solvant organique [BCKo7]. Le solvant, composant principal du cocktail scintillant, absorbe l'énergie des particules ionisantes émises par le radionucléide. Cette énergie, transmise sous forme d'excitation ou d'ionisation, migre d'une molécule de solvant à une autre, dans un laps de temps inférieur à la nanoseconde, jusqu'à être transformée en chaleur ou, avec une faible probabilité, être piégée par une molécule fluorescente du soluté.

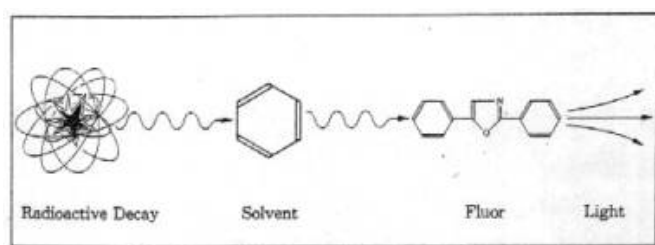


FIGURE 6: Principe des scintillateurs liquides

La fluorescence apparaissant lors de la désexcitation de la molécule du soluté est mesurée par des photomultiplicateurs face à face qui détectent les photons en coïncidence, ce qui permet de s'affranchir du bruit de fond des photomultiplicateurs.

L'avantage majeur de cette technique vient du fait qu'il s'agit d'une mesure, relativement facile à mettre en oeuvre, permettant une détection dans un angle solide de 4π sr puisque l'échantillon liquide est mélangé au cocktail scintillant.

Le rendement lumineux de ce type de détecteur est faible car, au final, il faut environ 1 keV d'énergie électronique pour produire quelques photo-électrons dans les photomultiplicateurs. Les fluctuations statistiques du nombre de photo-électrons sont importantes ce qui conduit à une très mauvaise résolution en énergie. Ainsi, bien que la scintillation liquide soit très efficace pour la mesure de l'activité, elle n'est pas la technique à privilégier pour la spectrométrie bêta.

1.3.2 Les détecteurs pour la spectrométrie β

1.3.2.1 Spectromètres magnétiques et électrostatiques

Le principe de ce type de mesure est de placer la source émettrice bêta dans un champ magnétique ou électrostatique.

Soumis à un champ magnétique constant, les particules possédant la même vitesse, c'est-à-dire la même énergie, décrivent des cercles de même diamètre et convergent vers le détecteur pour une certaine énergie. En variant le champ magnétique au cours du temps, on peut parcourir le spectre β en sélectionnant les électrons d'une seule énergie à la fois.

Différents types de détecteurs peuvent être utilisés, un semi-conducteur ou un compteur à gaz par exemple. Les performances de la mesure β dépendent donc du détecteur utilisé. Le premier détecteur utilisé a été la plaque photographique.

D'autres spectrographes à rayons β basés également sur l'utilisation d'un champ magnétique déflecteur, permettant la discrimination spatiale de chaque particule d'énergie différente, ont été développés. On peut citer notamment les lentilles électroniques [Tri24] et le spectrographe magnétique à double focalisation [SD47].

Deux points négatifs de ces techniques apparaissent ici. D'une part, l'angle solide de détection est limité, d'où le besoin de source d'activité intense. La disponibilité de telles sources pour tous les nucléides avec la contrainte d'une haute qualité de source, c'est-à-dire une épaisseur faible pour éviter l'auto-absorption, n'est pas évidente.

D'autre part, la variation au cours du temps du champ magnétique nécessaire pour couvrir toutes les énergies du spectre continu nécessite un temps d'acquisition relativement long, problématique dans le cas d'émetteurs à faible durée de vie, ou/et une source intense.

De plus, le seuil en énergie pouvant être obtenu avec un spectromètre magnétique, de l'ordre de quelques keV [TM58], suffisant pour les gammes d'énergie élevées, ne l'est pas pour la spectrométrie d'émetteurs bêta de faible énergie.

Hughes et Rojanski ont montré quant à eux, [HR25], qu'en utilisant un champ électrostatique radial, un faisceau d'électrons de même énergie pouvait être focalisé de la même manière qu'avec un champ magnétique. En revanche, ce type de spectromètre électrostatique, basé sur une différence de vitesse des électrons, ne peut plus être utilisé dans le domaine relativiste. En pratique, le seuil haut de ce type de détection est de l'ordre de quelques dizaines de keV.

1.3.2.2 *Semi-conducteurs*

Le matériau semi-conducteur devient conducteur quand des électrons acquièrent une énergie suffisante pour passer de la bande de valence à la bande de conduction, soit par agitation thermique soit par excitation externe. Sous l'action des rayonnements ionisants, cédant de l'énergie au milieu, il y a production de paires électron-trou et le matériau devient conducteur. En polarisant le matériau semi-conducteur, on peut ainsi collecter les paires électron-trou dont le nombre peut être relié à l'énergie de la particule incidente [Ly010].

L'énergie nécessaire pour produire une paire électron-trou est de l'ordre de 3 eV dans le silicium et le germanium, d'où un nombre important d'électrons collectés pour une énergie donnée. Cela permet d'obtenir une assez bonne qualité de détection dont notamment une résolution en énergie de l'ordre de 120 eV à 6 keV.

Le principal inconvénient de cette technique vient de la présence des zones mortes des semi-conducteurs. Ces zones, situées au niveau de chacune des électrodes de collecte, sont des régions avec collection de charges partielle. Le rendement de détection à basse énergie est donc très faible et on peut également observer une déformation du spectre. Les semi-conducteurs sont la plupart du temps dédiés à la détection des photons X ou γ et aux particules chargées (α et β) de haute énergie. Ils ne sont pas très bien adaptés à la mesure de particules chargées de faible énergie.

1.3.2.3 *Etat de l'art quantitatif des spectromètres bêta usuels*

	Résolution en énergie	Angle solide	Seuil (bas) en énergie
Spectromètres électrostatiques [HKP ⁺ 99]	~ 15 eV à 67 keV	qq. 10^{-3} à 10^{-2} sr	qq. dizaines de eV
Spectromètres magnétiques [OSS ⁺ 93]	~ 5 eV à 67 keV	qq. 10^{-2} sr	qq. dizaines de keV
Semi-conducteurs	200 eV à 67 keV	$< 2\pi$ sr	dépend de la configuration

TABLE 1: Performances des spectromètres bêta usuels.

Les spectromètres électrostatiques et magnétiques peuvent présenter une très bonne résolution en énergie à condition d'une mesure longue. Le seuil en énergie apparaissant dans le tableau 1 n'est pas vraiment représentatif du potentiel de ces détecteurs

dans la mesure où ils ont été utilisés essentiellement pour la recherche de la masse du neutrino ou pour la mesure du maximum en énergie du spectre β . Ils n'ont donc pas été optimisés dans l'optique d'un seuil bas mais plutôt dans celui d'une bonne résolution en énergie.

Les semi-conducteurs ont l'avantage d'un angle solide de détection permettant un taux de comptage élevé. On peut même implanter la source directement dans le matériau semi-conducteur pour une mesure d'angle solide 4π . Dans ce cas, le seuil est aussi amélioré puisqu'il dépend essentiellement de la présence ou non d'une fenêtre d'entrée.

Les détecteurs conventionnels convertissent une partie de l'énergie du rayonnement incident en énergie détectable, quantifiée en nombre de porteurs d'énergie, N , tels que les paires électron-trou ou les photons par exemple. Ce nombre de porteurs d'énergie détermine la fluctuation statistique du signal. En effet, lorsque le nombre de porteurs suit la loi de Poisson, la variance de ce nombre est égal à N et l'écart-type relatif à $1/\sqrt{N}$.

Améliorer la détection (résolution en énergie et seuil de détection) revient donc à augmenter le nombre de quanta ou de porteurs d'énergie par rapport aux détecteurs conventionnels. Pour cela, il faut utiliser des porteurs d'énergie dont la création requiert un dépôt d'énergie plus faible. C'est le cas, par exemple, des quasi-particules dans les matériaux supraconducteurs, cf. §1.4.1. En effet, les énergies de production des quasi-particules sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-6} eV à comparer à l'énergie nécessaire pour la production d'une paire électron-trou dans un semi-conducteur : quelques eV.

L'autre idée pour obtenir un détecteur plus performant est de détecter toute l'énergie du rayonnement incident sous forme de chaleur avec des calorimètres, cf. §1.4.2.1.

1.4 DETECTEURS CRYOGÉNIQUES

Le terme de détecteur cryogénique est associé à tout détecteur fonctionnant à une température inférieure à 4 K.

Développés à partir des années 80, ces types de détecteur permettent d'atteindre des seuils en énergie très bas et une résolution en énergie de quelques dizaines d'eV à quelques dizaines de keV [Twe96], [FFG⁺90]. Les proceedings des conférences Low Temperature Detectors dans le *Journal of Low Temperature Physics*, *NIM A* ou *AIP Conference Proceedings* donnent un très bon aperçu de tous les domaines de recherche dans lesquels les détecteurs cryogéniques sont utilisés.

L'énergie déposée dans un détecteur cryogénique peut être mesurée avec deux grandes classes de senseurs [Irwo7], [EMo8],

les senseurs à dissociation de paires pour des matériaux supraconducteurs, comme les Jonctions Tunnel Supraconductrices (STJ) et les "Kinetic Inductance Detectors" (KID), et les senseurs thermiques : les thermomètres à semi-conducteurs fortement dopés, les "Transition Edge Sensors" (TES) ou les calorimètres métalliques magnétiques.

1.4.1 Les senseurs à dissociation de paires

La supraconductivité, la circulation du courant électrique sans résistance, se produit quand des électrons de conduction d'un matériau approprié se regroupent deux par deux en "paires de Cooper". Ce phénomène d'origine quantique n'a lieu que lorsque le matériau est refroidi au-dessous d'une température généralement très basse, sa "température critique de transition", T_C .

Les détecteurs supraconducteurs de particules reposent sur le fait que la perte d'énergie d'une seule particule incidente suffit à dissocier des milliers de paires de Cooper [Tre11] en quasi-particules. On mesure alors le nombre de paires de Cooper brisées, ou le nombre de quasi-particules créées, en fonction de l'énergie incidente.

La théorie de la supraconductivité, la théorie BCS [BCS57], du nom des inventeurs, date de 1957 et montre que, à température nulle, l'énergie minimale pour briser une paire de Cooper, Δ , est proportionnelle à T_C :

$$\Delta = \frac{3,53 \times k_B T_C}{2}$$

avec k_B , la constante de Boltzmann.

Les valeurs typiques de T_C dans les supraconducteurs conventionnels étant de l'ordre de quelques kelvin, on en déduit que quelques meV suffisent à casser une paire de Cooper.

Ainsi, ces détecteurs à dissociation de paires, bien qu'étant basés sur une détection d'excitations comme les détecteurs conventionnels cités plus haut, ont un nombre de porteurs d'énergie nettement supérieurs. Raison pour laquelle leur qualité de détection est excellente.

1.4.1.1 Les Jonctions Tunnel Supraconductrices

Dans la version Supraconducteur-Isolant-Supraconducteur (SIS), une jonction tunnel supraconductrice est constituée d'au moins deux couches supraconductrices séparées par une mince couche d'isolant. Par un effet quantique, l'effet tunnel, les quasi-particules peuvent traverser cette barrière. La jonction tunnel étant polarisée, on observe un courant tunnel dépendant du nombre de quasi-particules traversant la barrière par unité de temps. Ce

courant dépend donc de l'énergie déposée par le rayonnement ayant interagi dans la couche supraconductrice [LZ05].

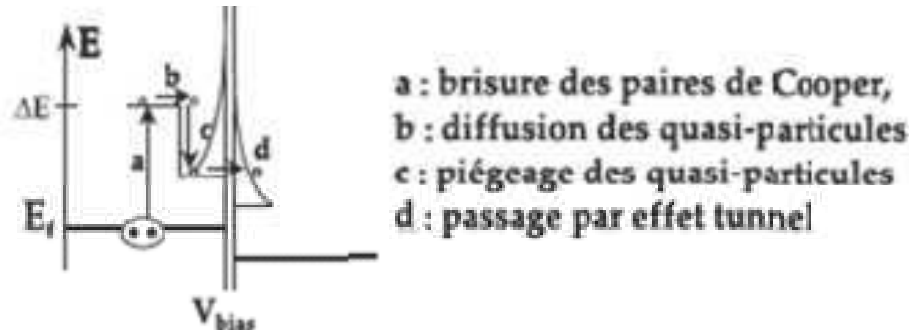


FIGURE 7: Jonction Tunnel Supraconductrice

1.4.1.2 Les "Kinetic Inductance Detectors"

Pour ce type de détecteur, la densité de paires de Cooper, n , est mesurée via l'impédance complexe du supraconducteur, L , [Day03] :

$$n = \frac{m}{2Le^2} \times \frac{l}{A}$$

avec m , la masse d'un électron

e , la charge d'un électron

l , la longueur du supraconducteur

A , la section du supraconducteur.

1.4.2 Les senseurs thermiques

Les détecteurs calorimétriques sont constitués essentiellement de trois briques de bases : un absorbeur de rayonnement, un senseur thermique et un lien thermique qui connecte l'absorbeur, ou le senseur à une source froide¹. Les calorimètres permettent directement la mesure de l'élévation de température ΔT consécutive au dépôt d'énergie E_0 par une particule dans l'absorbeur :

$$\Delta T = \frac{E_0}{C} \quad (1.4)$$

avec $C = m \times c$, la capacité thermique du détecteur, produit de la masse du matériau, m , et de sa capacité thermique massique, c . La détection étant basée sur une mesure de variation de température, le système fonctionne à très basse température atteinte, au LNHB, avec un réfrigérateur à dilution, § 3.4. De cette manière, on augmente le rapport signal sur bruit puisque les différents bruits dépendent de la température (§3.3) et que la

1. Dans certains détecteurs, le senseur joue également le rôle de l'absorbeur.

capacité thermique des métaux est également proportionnelle à la température (eq.1.4 et §1.2.2)

Le temps caractéristique de retour à l'équilibre thermique, qui se fait via le lien thermique est donné par

$$\tau = \frac{C}{\Theta}$$

où Θ est la conductivité du lien thermique entre le détecteur et le point froid. L'élévation de température au sein de l'absorbeur est mesurée à l'aide d'un senseur en fort contact thermique avec l'absorbeur. On trouve parmi les senseurs thermiques, des semi-conducteurs fortement dopés, des supraconducteurs proches de leur transition normal-supra : les Transition Edge Sensors et des senseurs paramagnétiques.

1.4.2.1 *Les semi-conducteurs fortement dopés*

Ce type de thermomètre est constitué d'un semi-conducteur dopé de manière à être légèrement en deçà de sa transition métal-isolant. Le type de semi-conducteur fortement dopé le plus répandu est sans doute celui obtenu via une irradiation de germanium par un flux de neutrons thermiques (NTD-Ge, Neutron Transmutation Doped Ge) [Paso3].

Dans ce type de semi-conducteur (NTD GE), à basse température, la résistivité est dominée par le "Variable Range Hopping effect" [Mot69] :

$$\rho(T) = \rho_0 \times \exp\left(\frac{T_0}{T}\right)^{0.5}$$

avec ρ_0 , constante dépendant des propriétés intrinsèques du semi-conducteur utilisé et T_0 , constante dépendant du niveau de dopage du semi-conducteur. On relie alors facilement une variation de température à une variation de résistivité du matériau.

1.4.2.2 *Les "Transition Edge Sensors"*

Ce type de senseurs, constitué d'un film mince d'un matériau supraconducteur, fonctionne à une température proche de la température de la transition normal-supraconducteur du matériau utilisé. Cette température de fonctionnement est choisie de façon à ce qu'une très faible élévation de température, due à l'interaction particule/matière, se traduise par une forte variation de la résistance en sortie du détecteur, fig. 8. On relie alors la valeur de la résistance à l'énergie de la particule incidente [IH05].

1.4.2.3 *Les senseurs paramagnétiques*

Le principe des calorimètres métalliques magnétiques repose sur la sensibilité des matériaux paramagnétiques à la température. L'aimantation du senseur paramagnétique soumis à un champ

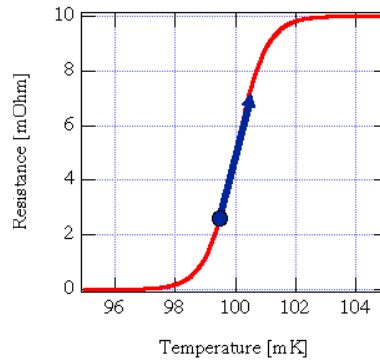


FIGURE 8: Diagramme de la résistance en fonction de la température pour un matériau supraconducteur proche de sa température de transition.

magnétique extérieur varie en fonction de la température et cette variation est lue par un magnétomètre, le SQUID (cf.§3.2), caractérisé par une sensibilité excellente et un très faible niveau de bruit.

La tension aux bornes du SQUID est proportionnelle à l'énergie déposée par le rayonnement incident dans l'absorbeur.

Ce type de détecteur étant celui qui a été utilisé au cours de cette thèse, une description plus complète du principe physique et des conditions d'utilisation fait l'objet de la partie §3.1.

Comme annoncé brièvement dans l'introduction, une connaissance théorique des décroissances β est essentielle pour une étude exhaustive des spectres des différents émetteurs β . En effet, il faut être en mesure de pallier les impossibilités de mesures de certains émetteurs rares ou à très faible durée de vie par exemple. La théorie, plus précisément les calculs de spectres, doivent cependant être validés avec des mesures de spectres issus de décroissances mesurables.

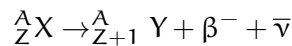
Un des objectifs de ce travail de thèse consiste à valider les calculs théoriques via la mesure expérimentale du spectre du ^{63}Ni . Dans ce chapitre théorique, les étapes du calcul des spectres β avec les différentes corrections à prendre en compte sont exposées. En particulier, le spectre du ^{63}Ni , auquel nous comparerons notre spectre expérimental, est présenté.

Remarque : Le programme utilisé pour effectuer les calculs théoriques décrits ici a été développé au sein de la Cellule des Données Fondamentales, unité du LNHB (§2.3).

2.1 CADRE THÉORIQUE

Remarque : Le travail de thèse expérimental concerne la désintégration β^- ; cependant, cette partie théorique concerne, sauf précision, aussi bien la décroissance β^- que la décroissance β^+ [WM66].

Dans la théorie de Fermi [Fer34] qui a suivi l'introduction de l'idée du neutrino par Pauli lors du congrès de Solvay en 1933, un antineutrino est créé lors de la désintégration bêta au même moment qu'un électron :



avec Z et A , respectivement le nombre de protons et le nombre de nucléons du noyau radioactif.

Cette désintégration à trois corps explique l'observation expérimentale de spectres à valeurs d'énergies continues. En effet, du fait de la répartition de l'impulsion entre ces 3 corps, la conservation de l'énergie-impulsion implique un spectre en énergie continu pour chaque corps.

La période des noyaux émetteurs β est déterminée par la probabilité de transition noyau père/noyau fils, elle-même fonction de l'amplitude de la fonction d'onde de l'électron et de l'antineutrino. Cette amplitude dépend principalement du moment angulaire orbital porté par les deux particules.

Le moment angulaire porté par la paire électron-antineutrino, répartie entre spin et moment angulaire orbital, correspond à la variation de moment angulaire total entre le noyau père et le noyau fils, $\Delta J = \Delta I + \Delta S$. $\pi_f \pi_i$ est le produit des parités du noyau fils et du noyau père. En fonction de la variation de moment angulaire et de la variation de parité, on obtient une classification des types de transitions bêta possibles, tab.2.

Type de transition	Règles de sélection
Permisses	$ \Delta J = 0, 1 ; \pi_f \pi_i = 1$
1ère interdite	$ \Delta J = 0, 1 ; \pi_f \pi_i = -1$
1ère interdite unique	$ \Delta J = 2 ; \pi_f \pi_i = -1$
2nde interdite	$ \Delta J = 2 ; \pi_f \pi_i = +1$
2nde interdite unique	$ \Delta J = 3 ; \pi_f \pi_i = +1$
3ème interdite	$ \Delta J = 3 ; \pi_f \pi_i = -1$
3ème interdite unique	$ \Delta J = 4 ; \pi_f \pi_i = -1$
4ème interdite	$ \Delta J = 4 ; \pi_f \pi_i = +1$

TABLE 2: Classification des transitions β .

L'amplitude de la fonction d'onde est maximisée si l'électron et l'antineutrino ne portent pas de moment angulaire orbital et s'il n'y a pas changement de parité. On parle alors de transition permise.

Le cas des transitions permises est celui où les calculs sont les plus simples. En ce qui concerne les transitions non-unique, les calculs deviennent plus difficiles. C'est pourquoi, ces transitions sont, jusqu'à présent, calculées théoriquement comme des transitions permises ; le résultat théorique est, dans un second temps, corrigé via une comparaison aux données expérimentales.

2.2 CALCULS DE SPECTRES EN ÉNERGIE

2.2.1 Première approche théorique de l'établissement d'un spectre β

On peut traiter la décroissance β , plus précisément les spectres en énergie, dans une première approche, en utilisant uniquement une description statistique de la répartition de l'énergie entre l'électron et le neutrino : on considère les éléments de cette réac-

tion comme des particules ponctuelles.

Pour une interaction donnée, la probabilité d'émission d'un électron d'énergie E par unité de temps est donnée par la règle d'or de Fermi [Fer50], [Belo7] :

$$N(E)dE = \frac{2\pi}{\hbar} |H_{fi}|^2 \frac{dN_F}{dE_0} \quad (2.1)$$

où $\frac{dN_F}{dE_0}$ est la densité d'états finaux accessibles au système par unité d'énergie totale, et H_{fi} est l'élément de matrice de l'interaction entre l'état initial et l'état final.

2.2.1.1 La densité d'états finaux accessibles au système

En considérant le noyau fils infiniment lourd devant l'électron et l'antineutrino, ces deux leptons transportent toute l'énergie libérée lors de la décroissance. En effet, tenir compte du recul du noyau ferait intervenir un facteur correctif de l'ordre de $1 + 10^{-5}$ [Wil82]. L'énergie disponible est donnée par :

$$E_0 = ({}_Z^A M - {}_{Z+1}^A M)c^2 = E_e + E_{\bar{\nu}} \quad (2.2)$$

avec M , la masse atomique du nucléide considéré, E_e et $E_{\bar{\nu}}$, respectivement l'énergie de l'électron et de l'antineutrino émis. Ainsi, le nombre d'états finaux, en terme de probabilité, est donné par :

$$dN_F = dN_e dN_{\bar{\nu}} \quad (2.3)$$

avec dN_e et $dN_{\bar{\nu}}$ respectivement le nombre d'états disponibles pour l'électron et pour l'antineutrino.

On exprime le nombre d'états dans l'espace des moments :

$$dN_e = \frac{4\pi p_e^2 dp_e}{(2\pi\hbar)^3} \quad (2.4)$$

avec $(2\pi\hbar)^3$, le volume de l'espace des phases occupé par un seul état d'une particule. En procédant de même avec l'antineutrino, on obtient :

$$\frac{dN_F}{dE_0} = \frac{4\pi p_e^2 dp_e}{(2\pi\hbar)^3} \frac{4\pi p_{\bar{\nu}}^2 dp_{\bar{\nu}}}{(2\pi\hbar)^3} \frac{1}{dE_0} \quad (2.5)$$

En considérant la masse de l'antineutrino nulle, son énergie totale est purement cinétique :

$$E_{\bar{\nu}} = cp_{\bar{\nu}} = E_0 - E_e \quad (2.6)$$

ainsi,

$$dp_{\bar{\nu}} = \frac{dE_0}{c} \quad (2.7)$$

De plus, $c^2 p dp = E dE$, donc, on obtient :

$$\frac{dN_F}{dE_0} = \frac{1}{4\pi^4 \hbar^6 c^5} p_e E_e (E_0 - E_e)^2 dE_e \quad (2.8)$$

2.2.1.2 L'élément de matrice de l'interaction entre état initial et état final

Dans la théorie de Fermi pour la décroissance β , les calculs associés à l'interaction entre les quatre particules de Fermi sont basés sur une analogie avec l'électromagnétisme.

En effet, la faible intensité de la décroissance permet de la traiter comme une interaction ponctuelle à quatre fermions avec une constante de couplage G_F :

$$H_{fi} = G_F \int \psi_f^* \psi_e^* \psi_{\bar{\nu}}^* \psi_i d\Omega \quad (2.9)$$

L'antineutrino n'étant pas porteur de charge, il ne subit pas l'influence des différentes charges à proximité. Sa fonction d'onde peut donc s'écrire comme une onde plane.

Concernant l'électron, on fait ici l'approximation qu'il ne subit pas non plus l'influence des charges environnantes. De plus, on se place dans l'approximation dipolaire quantique. En effet, on associe à un électron, sa longueur d'onde de Compton $\lambda_C = \frac{2\pi\hbar}{m_e c} \sim 2,426 \times 10^{-12} \text{m}$, qui est nettement supérieure aux rayons des noyaux qui sont inférieurs à 10^{-14}m . On décrit donc également l'électron via une onde plane :

$$\psi_e(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} e^{i \vec{p} \cdot \vec{r} / \hbar} \quad (2.10)$$

Pour la décroissance β , le terme de l'exponentielle est de l'ordre de 0,01. On peut donc développer en série :

$$\psi_e(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \left(1 + i \frac{\vec{p} \cdot \vec{r}}{\hbar} + \frac{i^2}{2} \left(\frac{\vec{p} \cdot \vec{r}}{\hbar} \right)^2 + \dots \right) \quad (2.11)$$

On peut exprimer l'onde plane de l'antineutrino de la même manière.

Dans l'hypothèse d'une transition permise, pour laquelle le moment angulaire orbital entre l'électron et l'antineutrino est nul, on fait l'approximation à l'ordre zéro. Ainsi, on a :

$$\psi_e(\mathbf{r}) = \psi_{\bar{\nu}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \quad (2.12)$$

Donc,

$$H_{fi} = \frac{G_F}{\Omega} \int \psi_f^* \psi_i d\Omega \quad (2.13)$$

L'intégrale apparaissant dans cette dernière équation est conventionnellement notée $\int 1$.

Les éléments de matrice nucléaire correspondent à un facteur de normalisation globale indépendant des observables de l'électron. Ils ont une influence sur la probabilité totale de transition,

c'est-à-dire la période de la décroissance. Cependant, ils n'influencent pas la forme du spectre en énergie de la décroissance β dans le cas d'une transition permise.

Remarque : Dans le cas d'une transition interdite, l'intégrale H_{fi} ne se simplifie plus, les calculs deviennent donc plus compliqués. Jusqu'à présent, les transitions interdites sont souvent traitées comme des transitions permises et l'ajustement de la théorie par rapport à une mesure expérimentale quantifie, entre autres, l'influence du moment angulaire.

2.2.1.3 Le spectre statistique d'une transition β

Différentes approximations ont été utilisées dans cette partie pour obtenir la forme statistique d'un spectre β :

- particules ponctuelles neutres et sans interaction entre elles à l'exception de l'interaction faible,
- antineutrino de masse négligeable,
- masse du noyau fils infinie devant celle de l'électron,
- électrons relativistes.

Dans ces approximations, la probabilité d'émission d'un électron d'énergie E décrite dans l'équation 2.1 devient d'après 2.8 et 2.13¹ :

$$N(E)dE = \frac{1}{2\pi^3 c^5 \hbar^7} G_F^2 |1|^2 p E (E_0 - E)^2 dE \quad (2.14)$$

En définissant une énergie normalisée, $\varepsilon = \frac{E}{m_e c^2}$, la forme statistique du spectre est alors donnée par :

$$N(\varepsilon)d\varepsilon = \frac{mc^2}{\hbar} \frac{G^2}{2\pi^3} |1|^2 \varepsilon \sqrt{\varepsilon^2 - 1} (\varepsilon_0 - \varepsilon)^2 d\varepsilon \quad (2.15)$$

avec G , nouvelle constante définie par $G = \frac{G_F}{mc^2} \left(\frac{mc}{\hbar}\right)^3$.

Le spectre statistique du ^{63}Ni est illustré sur la fig.9.

Bien que cette première approche suffise à donner une valeur de l'énergie maximale de la transition considérée, elle n'est pas suffisante pour l'étude de la forme du spectre. En effet, l'existence de charges change de manière significative l'interaction entre les particules, donc la forme du spectre continu.

Dans les parties qui suivent, des effets liés à la présence des charges et qui doivent corriger le calcul statistique sont présentés :

- l'effet du champ coulombien du noyau fils (fonction de Fermi), §2.2.2,
- l'effet de la distribution de charge à l'intérieur du noyau, §2.2.3.1,
- l'effet des couches électroniques de l'atome fils comme

1. en omettant l'indice e

- écran vis à vis du champ coulombien du noyau, §2.2.3.2,
- la possible interaction de l'électron avec les couches électroniques de l'atome fils §2.2.3.3,
- un possible échange d'électrons entre l'électron β (issu de la désintégration) et un électron des couches électroniques du noyau père §2.2.4.

2.2.2 L'effet du champ coulombien du noyau fils

La charge du noyau fils a une importance majeure sur l'énergie de l'électron émis. La prise en compte du potentiel coulombien permet, par exemple, de différencier les décroissances β^- et β^+ . En effet, le champ coulombien du noyau fils accélère les positrons et décélère les électrons. La probabilité d'émission, c'est-à-dire la statistique à basse énergie, pour la décroissance β^- est augmentée par l'effet du champ coulombien.

La correction des effets coulombiens sur le spectre introduit un facteur supplémentaire dans l'expression de la distribution de l'énergie de l'électron, appelé fonction de Fermi, $F(Z, E)$, avec E , l'énergie de l'électron considéré et Z , la charge du noyau fils.

Dans le cas d'un électron relativiste dans le champ d'une distribution de charge étendue uniforme,

$$F(Z, E) = 4(2pR)^{2(\gamma-1)} e^{\pi y} \frac{|\Gamma(x + iy)|^2}{|\Gamma(2x + 1)|^2} \quad (2.16)$$

avec p , l'impulsion de l'électron et R , le rayon du noyau fils et

$$\gamma = \sqrt{1 - (\alpha Z)^2}, \quad \alpha = G_e^2 = \frac{e^2}{\hbar c} = \frac{1}{137}, \quad y = \frac{\alpha Z E}{p},$$

$$x = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 \hbar c}, \quad \Gamma(z) = \int_0^{+\infty} t^{z-1} e^{-t} dt$$

On trouve des tables de la fonction de Fermi dans la littérature. Les valeurs les plus précises sont sans doute celles obtenues par Bhalla et Rose [BR62], [Bha64].

Ces auteurs incluent, dans leurs calculs, la correction liée à l'influence de la taille du noyau. En effet, comme dit précédemment, le calcul statistique fait l'approximation de noyaux ponctuels. Pour des noyaux moyens à lourds, une correction par rapport à la taille du noyau s'impose.

2.2.3 Effet de la taille du noyau, effet d'écrantage et corrections radiatives

2.2.3.1 L'effet de la taille du noyau

L'effet de la taille du noyau permet de corriger l'influence de la distribution des charges du noyau sur le spectre, via un facteur correctif $(1 + \lambda)$ si $Z > 50$:

$$\lambda = (Z - 50) [-25 \times 10^{-4} - 4 \times 10^{-6}(Z - 50)E] \quad (2.17)$$

Cette correction, donnée par [GM71], ne s'applique qu'aux noyaux lourds et a été déterminée à partir de graphes publiés par M.E. Rose et D.K. Holmes [RH51].

2.2.3.2 L'effet d'écrantage du nuage électronique du noyau fils

Le nuage électronique agit comme un écran vis à vis du champ coulombien du noyau fils. Son effet sur la fonction de Fermi doit être pris en compte. L'effet d'écrantage du nuage électronique du noyau fils est corrigé avec un potentiel de Fermi-Thomas, V_0 , pour une décroissance β^- [Goo54] :

$$V_0 = 6.971217 \times 10^{-5} Z^{1.378983} \quad (2.18)$$

et E est remplacé par $E - V_0$ si $(E - V_0) > 1$, c'est-à-dire $E_{\text{cin}} > m_e V_0$.

Cette correction n'est appliquée qu'à partir d'une certaine énergie seuil, $m_e V_0$. C'est pourquoi, il existe une discontinuité non physique dans le spectre calculé à cette énergie, fig.9. Si Z est inférieur à 100, l'énergie seuil est inférieure ou égale à 20 keV. Cette discontinuité peut facilement être lissée par différents types de fonctions, mais chaque fonction affectera différemment la forme du spectre selon ses paramètres. Le choix d'une fonction de lissage nécessite donc une contrainte expérimentale.

2.2.3.3 Les corrections radiatives

Les corrections radiatives sont dues à la perte d'énergie de l'électron dans le champ électromagnétique du noyau (photons virtuels et bremsstrahlung interne). Dans le code de calcul Betashape, elles sont calculées comme décrit dans [BB82], [Sir67], [Jau72].

Le spectre est corrigé d'un facteur $(1 + \delta(E, Z))$ calculé comme suit :

$$\delta(E, Z) = \delta_1(E) + \delta_2(Z) + \delta_3(Z) + \delta_4(Z) \quad (2.19)$$

avec

$$\begin{aligned} \delta_1(E) = & \frac{\alpha}{2\pi} \left[3 \ln \left(\frac{m_p}{m_e} \right) - \frac{3}{4} + 4 \left(\frac{\text{arcth}(\beta)}{\beta} - 1 \right) \right. \\ & \left(\frac{E_0 - E}{3E} - \frac{3}{2} + \ln(2(E_0 - E)) \right) + \frac{4}{\beta} L \left(\frac{2\beta}{1+\beta} \right) \\ & \left. + \frac{\text{arcth}\beta}{\beta} \left[2(1+\beta^2) + \frac{(E_0 - E)^2}{6E^2} - 4\text{arcth}\beta \right] \right], \\ & \beta = \frac{\eta}{E} \quad \text{et} \quad L(x) = \int_0^x \frac{\ln(1-t)}{t} dt, \quad (2.20) \end{aligned}$$

$$\delta_2(Z) = 1, 1 | Z | \alpha^2 \ln \left(\frac{m_p}{m_e} \right), \quad (2.21)$$

$$\delta_3(Z) = \frac{Z^2 \alpha^3}{\pi} \left(3 \ln 2 - \frac{3}{2} + \frac{\pi^2}{3} \right) \ln \left(\frac{m_p}{m_e} \right), \quad (2.22)$$

$$\delta_3(Z) = \frac{|Z| \alpha^3}{2\pi} \ln \left(\frac{2m_p}{m_e} \right). \quad (2.23)$$

2.2.4 L'effet d'échange entre l'électron émis et un électron de l'atome fils

Lors de la décroissance β , les électrons émis sont libres et forment un continuum d'états d'énergies différentes comme le montre le spectre continu. Cependant, il existe une possibilité pour que l'électron soit émis dans une orbitale atomique du cortège électronique du noyau fils, remplaçant ainsi un électron de l'orbitale qui est alors émis dans le continuum.

Une désintégration bêta vers un état final peut donc être vue comme le résultat de deux processus : la création d'un électron β directement dans un état du continuum et la création d'un électron β dans une orbitale atomique avec éjection simultanée d'un électron de cette orbitale vers un état du continuum. Dans ce deuxième processus, l'électron éjecté aura l'énergie de l'électron β initial moins l'énergie de liaison de l'orbitale atomique.

Harston et Pyper ont développé un formalisme permettant d'étudier l'influence des orbitales atomiques sur la décroissance β^- [HP92]. Ce formalisme développé plus en détails dans [PH88], n'est valable que pour les transitions permises. Ainsi, seules les orbitales ns sont prises en compte. En effet, lors d'une transition permise, l'électron et le neutrino n'emportent pas de moment angulaire, comme explicité plus haut. Pour une transition permise, la variation de moment cinétique total ne résulte que de l'alignement des spins de ces deux particules, d'où $\Delta J = 0, \pm 1$.

La création d'un électron β n'est donc possible que sur des orbitales atomiques ns. Les électrons des autres orbitales restent spectateurs.

Remarque : D'après [PH88] cependant, les couches supérieures peuvent avoir une influence si elles ne sont pas saturées, ce qui ouvre la voie à une influence possible de l'état chimique du radionucléide.

Sauf pour les radionucléides pour lesquels Z est proche de 1, l'intensité du spectre bêta incluant les effets d'échange peut s'exprimer en fonction de l'intensité du spectre bêta ignorant ces effets :

$$\frac{dI}{dE} = \frac{dI^{NE}}{dE} [1 + \eta_{ex}^T(E)] \quad (2.24)$$

où NE signifie "no exchange", et η_{ex}^T est le facteur d'échange total [Mou12]. La prise en compte de l'effet d'échange dans le calcul d'un spectre bêta apparaît donc comme un simple facteur correctif.

Le facteur d'échange total est donné par l'expression :

$$\eta_{ex}^T(E) = f_s (2T_s + T_s^2) \quad (2.25)$$

avec

$$f_s = \frac{P_{Es'}^2(R)}{P_{Es'}^2(R) + Q_{Ep'}^2(R)} \quad (2.26)$$

et

$$T_s = - \sum_{ns'} \langle Es' | ns \rangle \frac{P_{ns'}(R)}{P_{Es'}(R)} \quad (2.27)$$

$P_{Es'}$ et $Q_{Ep'}$ sont respectivement la large et la petite composante radiale de la fonction d'onde de Dirac décrivant l'électron s' d'énergie cinétique E [EL]. $\langle Es' | ns \rangle$ représente le recouvrement entre la fonction d'onde décrivant l'électron dans l'orbital ns de l'atome parent et la fonction d'onde de l'électron s d'énergie cinétique E du continuum.

2.2.5 Conclusion : l'expression complète d'un spectre β

L'expression du spectre en énergie des électrons peut s'exprimer sous la forme :

$$N(E) = \eta E(E_0 - E)^2 F(Z, E) S(Z, E) X(E) \quad (2.28)$$

avec

- $\eta = 1/(2\pi^3 c^5 \hbar^7) G_F^2 |\int 1|^2 p$ (d'après l'équation 2.14)
- $F(Z, E)$, la fonction de Fermi (d'après l'équation 2.16)

- $S(Z,E)$, le produit des corrections liés à l'effet d'écrantage du nuage électronique du noyau fils (§2.2.3.2), celles liées à l'effet de la taille du noyau (§2.2.3.1) et les corrections radiatives (§2.2.3.3)
- $X(E) = 1 + \eta_{ex}^T(E)$, le facteur correctif appliqué au spectre prenant en compte l'effet d'échange (équation 2.24).

Pour faciliter la comparaison entre les données expérimentales et les prédictions théoriques, Kurie utilise une autre représentation pour la décroissance β [KRP36] :

$$K(E) = \left(\frac{N(E)}{F(Z, E)S(Z, E)X(E)\eta E} \right)^{\frac{1}{2}} \sim \text{const.} \times (E_0 - E) \quad (2.29)$$

Dans l'idéal, le diagramme de Kurie est une droite coupant l'axe des abscisses en E_0 . Le diagramme de Kurie est donc une méthode de détermination de l'énergie maximale du spectre.

Le spectre en énergie d'une transition β corrigé des différents effets décrits et/ou le diagramme de Kurie sont calculés via le code Betashape développé au sein du Laboratoire National Henri Becquerel [Mou10a] (fig.9).

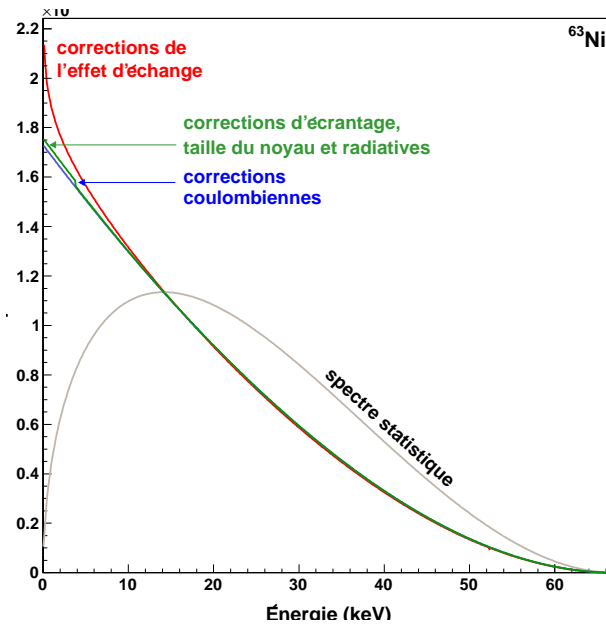


FIGURE 9: Le spectre théorique du ^{63}Ni et l'influence des différentes corrections appliquées, calculés avec Betashape.

2.3 LE CODE DE CALCUL UTILISÉ : BETASHAPE

BetaShape, écrit en langage C++, se décompose en deux parties : la partie calculatoire dédiée au calcul du spectre et une partie interface qui gère les entrées et les sorties [Mou10b].

Les paramètres nécessaires aux calculs, donnés par l'utilisateur sont : Z et A du noyau émetteur, type de la transition (β^\pm), ordre de la transition, énergie maximale du spectre, pas en énergie du calcul, corrections souhaitées (radiatives, écrantage, taille du noyau).

Le programme calcule le spectre demandé et son énergie moyenne, ainsi que le spectre statistique et son énergie moyenne. Par défaut, toutes les corrections sont prises en compte. Dans le cas de la décroissance bêta moins, l'énergie seuil à partir de laquelle la correction d'écrantage est appliquée est calculée et récupérable.

On peut aussi choisir d'afficher les spectres obtenus avec les différentes corrections appliquées successivement pour mieux visualiser leur influence, comme par exemple sur le spectre en énergie du ^{63}Ni , fig.9.

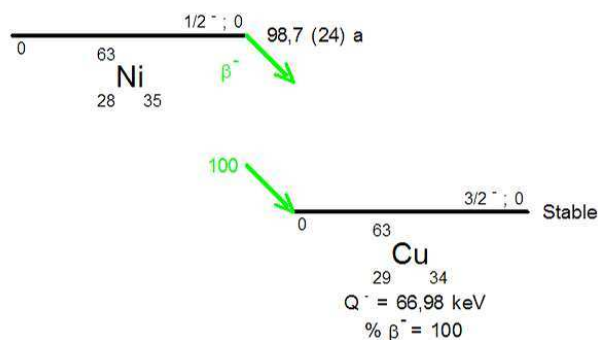
2.4 LA DÉCROISSANCE β DU ^{63}Ni

Le nucléide choisi pour l'étude du potentiel des calorimètres métalliques magnétiques pour la spectrométrie β est le ^{63}Ni .

Le ^{63}Ni est un émetteur β pur, d'origine artificielle, de transition permise, de période $98,7 \pm 2,4$ ans² et qui donne naissance au ^{63}Cu . L'énergie maximale du spectre continu à considérer est de $66,980 \pm 0,015$ keV, pour une énergie moyenne de $17,434 \pm 0,004$ keV (figure 10).

LNE-LNHB/CEA - Table de Radionucléides

$^{63}_{28}\text{Ni}_{35}$



KRISS / K.B.Lee

28/11/2005

FIGURE 10: Schéma de désintégration du ^{63}Ni

2. sans autre précision, toutes les incertitudes indiquées comme $x \pm y$ sont des incertitudes type, c'est-à-dire à $\pm 1\sigma$

La présence de ^{63}Ni est essentiellement due aux activités humaines. En effet, il s'agit d'un produit d'activation présent dans les réacteurs nucléaires. Ainsi, dans l'environnement, on peut en trouver dans les déchets à faible niveau de radioactivité générés par le cycle du combustible. En guise d'exemple, un réacteur de 900 MW, ayant fonctionné pendant 40 ans à 80% de sa puissance, comporte dans sa structure au moment du démantèlement environ 4×10^{16} Bq de ^{63}Ni ([Bea86]). Du ^{63}Ni a également été détecté dans l'environnement suite aux essais nucléaires atmosphériques. En effet, des mesures effectuées en 1954 sur l'atoll de Bikini ont donné comme valeur maximale observée dans l'environnement 2,7 Bq par gramme d'échantillon ([CMB75]).

La raison déterminante qui nous a poussés à choisir ce radionucléide pour notre étude est l'opportunité de confronter un spectre expérimental au spectre calculé à partir de la théorie bien connue des transitions permises. De plus, un autre aspect est apparu un peu plus tardivement au cours de l'étude : la possibilité avec ce radionucléide d'observer expérimentalement l'effet d'échange.

L'objectif est donc de développer un calorimètre métallique magnétique suffisamment performant et juste pour établir un spectre précis sur toute la gamme d'énergie de la décroissance du ^{63}Ni , spectre qui sera comparé au calcul théorique.

MESURE AVEC DES CALORIMÈTRES MÉTALLIQUES MAGNÉTIQUES (MMC)

3.1 LE PRINCIPE PHYSIQUE DES MMC

Pour la mesure d'énergie, l'utilisation d'un calorimètre permet d'atteindre un seuil de détection très bas. En effet, contrairement aux semi-conducteurs par exemple dans lesquels une énergie minimale est nécessaire pour créer des paires électrons-trous porteurs d'information, la moindre interaction d'un rayonnement avec la matière provoque un dégagement de chaleur. Ainsi, la calorimétrie est la technique idéale pour la mesure de faibles énergies.

Un calorimètre magnétique [Sei86] mesure l'énergie déposée sous forme de chaleur suite à l'interaction d'une particule avec l'absorbeur, comme une variation de moment magnétique au sein d'un matériau paramagnétique, le senseur, couplé thermiquement à l'absorbeur. On appelle détecteur le couple absorbeur / senseur.

La variation de flux magnétique mesuré par un SQUID (Superconducting QUantum Interference Device), $\delta\Phi$, est fonction de l'énergie déposée par la particule incidente, δE :

$$\delta\Phi = \mu_0 \frac{G}{r} \left(\frac{\delta M}{\delta T} \right)_{T_i} \frac{\delta E}{C_a + C_s} \quad (3.1)$$

or, d'après la thermodynamique au sein du senseur, en considérant les spins libres $\frac{\delta M}{\delta T} = \frac{C_s}{B}$
d'où,

$$\delta\Phi = \mu_0 \frac{G}{r} \left(\frac{C_s}{C_s + C_a} \right) \frac{\delta E}{B} \quad (3.2)$$

avec μ_0 , la perméabilité du vide,

G , un facteur de couplage sans unité entre la variation du moment magnétique et le flux mesuré par le magnétomètre,

r , le rayon de la boucle sensible du magnétomètre,

$\left(\frac{\delta M}{\delta T} \right)_{T_i}$, la variation de l'aimantation¹ du senseur en fonction de la température, pour une température du bain thermique T_i ,

C_a et C_s , respectivement, les capacités thermiques de l'absorbeur et du senseur,

B , le champ magnétique extérieur.

1. l'aimantation d'un matériau est définie comme étant la somme des moments magnétiques de l'ensemble des atomes constituant ce matériau

La capacité thermique d'un matériau dépend de sa masse et de la température ($\propto T$ pour les métaux et $\propto T^3$ pour les diélectriques, à très basse température). D'après l'équation 3.1, pour augmenter l'amplitude du signal, il faut minimiser la capacité thermique du détecteur ; c'est pourquoi, on travaille à des températures de l'ordre de la quinzaine de mK, dans un réfrigérateur à dilution, § 3.4.

Le détecteur est remis à température d'équilibre via le lien thermique reliant l'absorbeur ou le senseur au support du détecteur qui joue le rôle de bain thermique. La chaleur associée à l'interaction du rayonnement avec l'absorbeur est évacuée en dehors du détecteur par ce lien. Ce lien thermique est un fil d'or dont le dimensionnement donne la constante de temps de remise à l'équilibre :

$$\tau = \frac{C_a + C_s}{\Theta}$$

avec $\Theta = \frac{\lambda A}{l}$, la conductance thermique du lien entre le détecteur et le bain,

λ , la conductivité thermique de l'or,

A et l , respectivement la section et la longueur du lien thermique.

La constante de temps de remise à l'équilibre thermique doit être suffisamment grande pour ne pas évacuer la chaleur avant qu'elle ne soit lue par le senseur et suffisamment petite pour discriminer chaque interaction rayonnement-absorbeur, en fonction du taux de comptage attendu dans la source β .

Pour optimiser notre détecteur, il est important de cibler les performances attendues d'un spectromètre de spectres β continus² :

- très faible seuil de détection ($\sim 1\%$ de l'énergie maximale mesurée),
- bonne résolution en énergie (40 eV à 60 keV),
- rendement de détection très élevé et constant sur toute la gamme d'énergie (100%),
- détecteur linéaire sur une gamme d'énergie aussi large possible (erreur de linéarité $< 0,5\%$ sur deux ordres de grandeur en énergie),
- système rapide permettant la détection de chaque interaction (temps de diffusion de chaleur : $\sim 10\ \mu\text{s}$ et temps de remise à l'équilibre : qqms).

2. entre parenthèses, figurent les performances attendues avec les calorimètres métalliques magnétiques

3.1.1 L'absorbeur

Durant les années suivant le travail de Seidel, de multiples travaux ont été conduits, par Umlauf et son équipe entre autres, quant à l'utilisation du paramagnétisme en association avec un diélectrique pour la mesure de faibles énergies déposées dans un absorbeur [BU88],[FMU93]. Cependant, pour de nombreuses applications, dont la spectrométrie β^- , l'utilisation de diélectriques comme absorbeur n'est pas appropriée. En effet, la réponse du détecteur est lente du fait du faible couplage phonons/moments magnétiques à basse température.

En 1993, Bandler *et al.* suggère que la solution pour obtenir un système plus rapide est d'utiliser un absorbeur métallique couplé à un senseur métallique dopé en ions magnétiques [BEL⁺93]. En effet, le couplage électrons de conduction/ moments magnétiques est plus rapide de plusieurs ordres de grandeur que le couplage avec un matériau isolant.

Pour la spectrométrie β^- développée avec les calorimètres magnétiques, la source de rayonnement est située à l'intérieur même de l'absorbeur. Cette géométrie permet une détection dans un angle solide de 4π sr.

Une matrice d'or a été choisie comme absorbeur. L'or, $Z = 79$, en plus d'être chimiquement inerte, possède un fort pouvoir d'arrêt. Une épaisseur de $16\text{ }\mu\text{m}$ d'or arrête complètement des électrons de 70 keV, suffisant pour la mesure du spectre du ^{63}Ni . De plus, l'or est l'un des métaux présentant la plus faible capacité thermique.

En fonction de l'émetteur β^- à mesurer, l'absorbeur est dimensionné pour arrêter complètement tous les électrons de la gamme d'énergie considérée. Ajouté à l'angle de détection 4π sr et au seuil en énergie très bas, ce dimensionnement permet un rendement de 100 % sur toute la gamme d'énergie du spectre continu à mesurer.

L'interaction du rayonnement avec l'absorbeur augmente la température du système des électrons de conduction. L'absorbeur est soudé au senseur ce qui permet le couplage des électrons de conduction de l'absorbeur à ceux du senseur. Ces derniers sont très bien couplés thermiquement aux moments magnétiques des ions paramagnétiques à l'origine du moment magnétique (voir paragraphe suivant). Pour un couplage électrons de conduction / spins donné, la qualité de l'interface absorbeur / senseur peut limiter la rapidité du système.

3.1.2 Le senseur

Le nombre d'éléments qui contribuent de façon significative au magnétisme de la matière est relativement limité. On trouve une quinzaine d'éléments parmi lesquels des éléments de transition : Cr, Mn, Fe, Co et Ni (dont la couche 3d, externe, n'est pas saturée) ainsi que la plupart des éléments terres rares (la couche 4f, interne, n'est pas saturée)[Deg92].

Dans le senseur métallique, lorsqu'un électron de conduction passe au voisinage d'un ion magnétique, il interagit avec les électrons de la couche non saturée.

Ainsi, par l'intermédiaire de cet électron de conduction qui se déplace, il y a un couplage indirect entre les différents spins localisés : l'interaction Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) [RK54], [dTdLoo].

Cette interaction d'échange indirecte a des conséquences indésirables sur les performances du senseur : une capacité thermique additionnelle et une sensibilité moindre de l'aimantation à la variation de température.

Le choix des ions magnétiques va ainsi se porter sur les éléments minimisant cette interaction, c'est-à-dire les éléments de terres rares. En effet, les orbitales 4f internes sont écrantées par les couches saturées externes contrairement aux orbitales non saturées 3d externes.

Remarque : Alors que le transfert d'énergie aux électrons de conduction est un processus continu, dans le senseur, l'énergie est quantifiée. En effet, changer l'orientation d'un spin nécessite une énergie de l'ordre du μeV ; ainsi, 6 keV représente un changement d'orientation d'environ 10^9 spins.

Jusqu'à présent, la plupart des études concernant les calorimètres métalliques magnétiques se sont portées sur une matrice en or dopée en ions erbium comme senseur. Cette combinaison a l'avantage d'être parfaitement caractérisée aux températures qui nous intéressent, raison pour laquelle nous avons choisi cet alliage.

Caractéristiques d'une matrice d'or dopée en ions erbium

La susceptibilité magnétique d'une matrice d'or dopée en ions erbium est dans une première approximation égale à la susceptibilité des ions erbium : elle suit la loi de Curie avec un moment angulaire total $J=15/2$ et un facteur de Landé $g_J=6/5$ [AM76]. Cette première approximation est valable pour des températures supérieures à 100 K [WH69]. En deçà de cette température, il faut considérer l'influence de la matrice d'or sur le système ions erbium. En effet, dans la structure cubique face centrée de la

matrice d'or, l'ion erbium, Er^{3+} , remplace un atome d'or dans la structure cristalline donnant ainsi trois de ces électrons à la bande de conduction. La dégénérescence du niveau fondamental de l'ion erbium est ainsi levée, divisée en une série de multiplets, dont le plus bas en énergie est un doublet, Γ_7 . Ainsi, en dessous de 100 K, on considère ce nouveau système à deux niveaux tel que J est remplacé par un spin effectif $S=1/2$ et g_J par un facteur isotrope $g=6,8$, qui suit aussi la loi de Curie. A très basse température, en dessous de 50 mK, la susceptibilité est moins dépendante de la température. Cela est dû à l'influence de l'interaction RKKY entre les moments magnétiques au sein de la matrice. La figure 11 montre l'exemple de la susceptibilité magnétique d'une matrice d'or dopée en ions erbium à hauteur de 600 ppm dans la gamme de température allant de 100 μK à 300 K.

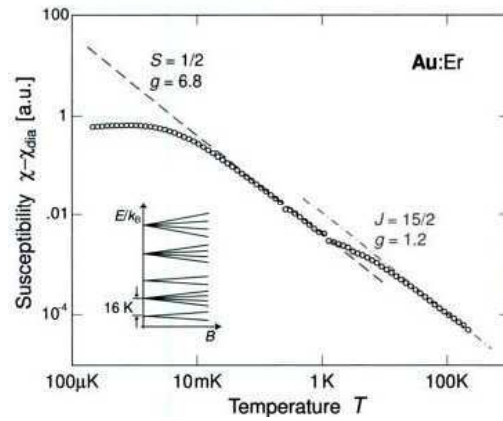


FIGURE 11: Susceptibilité magnétique d'une matrice d'or contenant 600 ppm d'ions erbium en fonction de la température[FES05]

La capacité thermique d'un système de spins qui n'interagissent pas entre eux est donné par l'expression de Schottky :

$$C_S = Nk_B \left(\frac{E}{k_B T} \right)^2 \frac{e^{E/k_B T}}{(e^{E/k_B T} + 1)^2}$$

avec E , la séparation énergétique des deux niveaux du doublet donnée par $E = g\mu_B B$, μ_B étant le magnéton de Bohr.

La température du maximum de la capacité thermique de ce type de système dépend donc de la valeur du champ magnétique extérieur. Une matrice d'or dopée en ions erbium montre cette même dépendance par rapport au champ magnétique, voir figure 12. Cependant, le maximum de la capacité thermique de ce système dopé est différent de celui calculé pour un système sans interaction.

En effet, de la même manière que pour la susceptibilité, la capacité thermique est influencée par la matrice cristalline dans laquelle sont incorporés les ions erbium et par l'interaction RKKY.

Ainsi, soumis à un champ magnétique extérieur, la détermination de la capacité thermique et de l'aimantation d'un système d'ions erbium interagissant les uns avec les autres et distribués aléatoirement dans une matrice d'or nécessite des simulations numériques [WW77],[WW80]. Le résultat de ces simulations est donné figure 12 pour une concentration en ions erbium de l'ordre de 300 ppm.

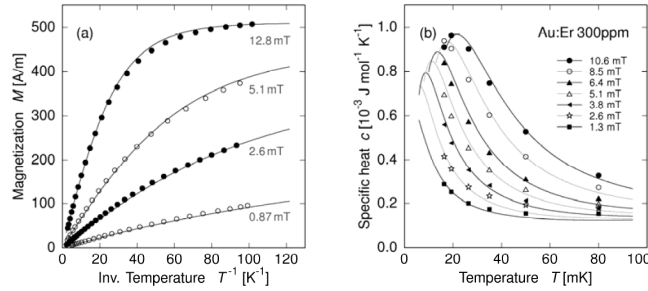


FIGURE 12: Exemple de l'aimantation et de la capacité thermique molaire caractéristiques d'un senseur en or dopé en erbium (300 ppm) [EMo8] en fonction de la température pour différentes valeurs de champ magnétique.

En dessous d'une certaine température, la matrice d'or dopée en erbium bascule dans un état dit de verre de spins. Il s'agit d'un état désordonné mais surtout gelé, c'est-à-dire que la matrice or-erbium devient insensible aux perturbations extérieures (fig.11). Par exemple, pour 600 ppm d'Er, la température de verre de spins est de 1,4 mK. La température de fonctionnement du réfrigérateur à dilution, environ une dizaine de mK, soit supérieure d'un ordre de grandeur à la température de verre de spins, est donc bien adaptée à l'utilisation de cet alliage.

Remarque : Le calcul des grandeurs thermodynamiques du senseur optimales en fonction de la capacité thermique de l'absorbeur permet de déterminer la sensibilité d'un calorimètre magnétique. Les valeurs optimales de la concentration en erbium, du champ magnétique et la géométrie optimale du senseur peuvent ainsi être fixées par le calcul.

Pour mesurer une variation d'aimantation du senseur lors d'une augmentation de la température de l'absorbeur, il faut au préalable avoir fixé une "aimantation d'équilibre". Soumis à un champ magnétique, les spins des ions Er ont un degré d'orientation fixé. Et, c'est à partir de cet état initial que la variation

Performances visées	Moyens mis en oeuvre
très faible seuil de détection	- calorimètre cryogénique - SQUID à double étage
rendement de détection très élevé et constant sur la gamme d'énergie étudiée	- angle 4π - absorbeur en or dimensionné en fonction de l'énergie
détecteur à réponse linéaire en fonction de l'énergie déposée	- calorimétrie - dimensionnement de l'absorbeur
système rapide permettant le comptage	- absorbeur métallique couplé à un thermomètre paramagnétique - temps de remise à l'équilibre thermique réglable

TABLE 3: Tableau récapitulatif des moyens mis en oeuvre dans la construction du calorimètre métallique magnétique utilisé pour répondre aux exigences d'un spectromètre β

d'aimantation du senseur est définie, lorsque les électrons de conduction interagissent avec les spins.

La lecture de la variation d'aimantation dans le senseur par le SQUID nécessite que le senseur soit couplé magnétiquement au SQUID. Il existe deux types de couplage magnétique : le couplage direct et le couplage indirect via un transformateur de flux.

Le couplage direct est assez simple dans son principe : on met le senseur dans la boucle sensible du SQUID. Le couplage indirect via un transformateur de flux implique une bobine de lecture du champ magnétique du senseur associée à une bobine d'injection du champ magnétique dans la boucle sensible du SQUID. Ces deux types de couplage sont détaillés dans la partie 4.1.

Dans le but de diminuer la contribution du bruit de l'électronique à température ambiante, on couple le SQUID de lecture à un SQUID de pré-amplification (§3.10).

Le tableau 3 résume les moyens mis en oeuvre permettant d'obtenir les performances suffisantes pour une spectrométrie β .

3.2 LA LECTURE DES MMC AVEC UN DC-SQUID

Pour lire la variation d'aimantation du senseur, on utilise le magnétomètre le plus sensible existant de nos jours, un SQUID (Superconducting QUantum Interference Devices). En effet, il est

capable de détecter des variations de flux magnétique de l'ordre du millionième du quantum de flux et de mesurer des grandeurs physiques très variées du moment qu'elles peuvent être traduites en signal magnétique ou électrique. Le panel d'utilisation des SQUIDS est ainsi très large, y compris dans le domaine de la métrologie [GP06].

Le SQUID est basé sur le principe de l'effet tunnel des paires de Cooper dans une jonction Josephson.

3.2.1 La jonction Josephson

En 1962, Josephson prédit l'effet tunnel des paires de Cooper, effet qui porte son nom depuis : une paire de Cooper peut traverser une fine barrière isolante ou normale séparant deux supraconducteurs [Jos62]. Un an plus tard, l'effet Josephson est observé expérimentalement par Anderson et Rowell [AR63].

Dans une jonction Josephson, tant que le courant I appliqué n'est pas supérieur à un courant critique noté I_C , les paires de Cooper peuvent traverser, par effet tunnel, la barrière isolante sans développer de tension à ses bornes. Si on applique un courant continu I supérieur au courant critique, d'après la première relation de Josephson, le courant traversant la jonction est donné par

$$I = I_C \sin \delta$$

avec δ , la différence de phase entre les deux condensats de paires de Cooper de part et d'autre de la jonction.

La tension aux bornes de la jonction est donnée alors par la seconde relation de Josephson

$$V = \frac{\Phi_0}{2\pi} \times \frac{d\delta}{dt}$$

avec Φ_0 , le quantum de flux magnétique égal à $h/2e \sim 2,07 \times 10^{-15} \text{Wb} \sim 2,07 \times 10^{-15} \text{V.s}$

La dépendance temporelle de la phase s'écrit alors

$$\delta(t) = \frac{2\pi}{\Phi_0} V_0 t + \delta_0$$

et ainsi, on obtient

$$I(t) = I_C \sin\left(\frac{2\pi}{\Phi_0} V_0 t + \delta_0\right)$$

Le courant oscille donc à la fréquence $f_0 = \frac{V_0}{\Phi_0}$.

3.2.2 L'électronique à SQUID

3.2.2.1 Le principe du SQUID

Le SQUID est composé d'un anneau supraconducteur, d'un diamètre $\sim 50 \mu\text{m}$, coupé par une ou deux jonctions Josephson,

appelé respectivement SQUID-rf et SQUID-dc. Sur le principe, le diamètre de la boucle sensible du SQUID peut être grand mais, en pratique, un diamètre faible est primordial pour un faible niveau de bruit.

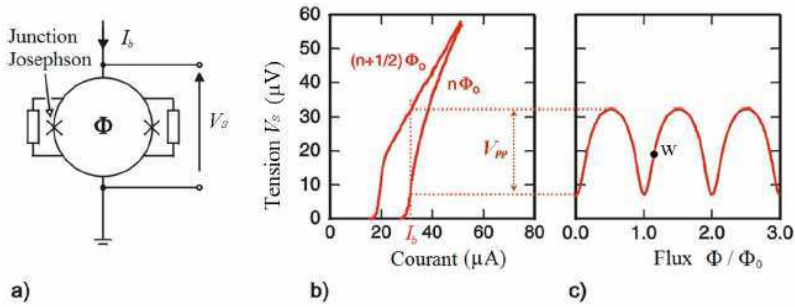


FIGURE 13: Le SQUID-dc : (a) Schéma ; (b) Courant vs tension en fonction des valeurs du flux, le point de fonctionnement est fixé par le courant de polarisation I_B ; (c) Tension vs Flux normalisé par rapport à Φ_0

La résolution en énergie obtenue avec un SQUID-dc peut être 500 fois meilleure que celle obtenue avec un SQUID-rf, raison pour laquelle, nous utilisons un SQUID-dc[GP06]. Seul le comportement du SQUID-dc, utilisé dans notre montage, est présenté ici, fig. 13(a). Ce type de SQUID possède généralement des résistances en parallèle des jonctions Josephson pour prévenir tout comportement d'hystérésis.

Quand le SQUID est polarisé par un courant I_B supérieur au courant I_C (fig.13(b)), la tension en sortie du SQUID est une fonction périodique du flux magnétique, de période Φ_0 (fig.13(c)). Le flux magnétique s'exprime ainsi en nombre de Φ_0 .

3.2.2.2 La contre-réaction du SQUID

Dans le but d'obtenir une tension à la sortie linéaire en fonction d'un flux mesuré quelconque, on utilise une électronique de contre-réaction associée au SQUID de lecture. Cette contre-réaction permet de fixer un point de fonctionnement W sur la caractéristique V- Φ du SQUID (fig.13(c)).

A la lecture d'un flux magnétique Φ_d , la tension en sortie, V_f est amplifiée et intégrée puis transformée en courant via la résistance de contre-réaction, R_f . Ce courant est injecté via une bobine de contre-réaction d'inductance mutuelle M_f tel que le flux réinjecté $\Phi_f = \frac{M_f V_f}{R_f}$ soit égal à l'opposé du flux magnétique lu, Φ_d .

La contre-réaction du SQUID de lecture implique un retard, t_d , qui peut être limitant si les réglages ne sont pas optimaux. En effet, on comprend aisément qu'un retard intervient lors de la

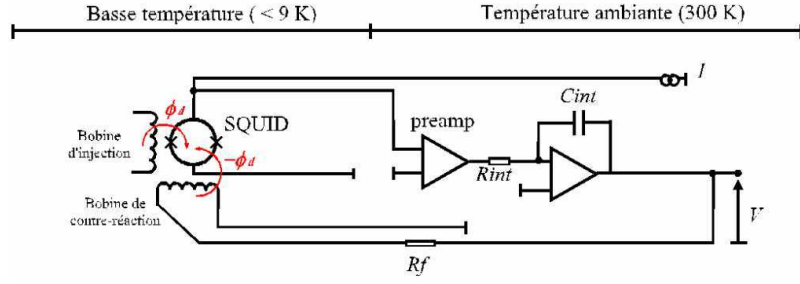


FIGURE 14: Schéma d'une électronique à SQUID avec une contre-réaction

transmission de l'information à travers la résistance et la bobine de contre-réaction.

On définit la vitesse de balayage, $\dot{\Phi}$ tel que :

$$\dot{\Phi} = \frac{\delta \Phi}{\delta t} = \pi \Phi_{\text{lin}} f_1 \quad (3.3)$$

avec Φ_{lin} , la gamme linéaire du flux définie par $\Phi_{\text{lin}} = \frac{V_{\text{pp}}}{|V_{\Phi}|}$ et $V_{\Phi} = \frac{\delta V}{\delta \Phi_a}$, le coefficient de transfert flux-tension au point de fonctionnement.

f_1 est le gain unitaire (exprimé en Hertz) de la boucle de contre-réaction ouverte, défini tel que

$$f_1 = \frac{R_f f_{\text{GBW}}}{V_{\Phi} M_f} \quad (3.4)$$

R_f étant la résistance de contre-réaction et f_{GBW} , le gain bande passante venant des électroniques de contre-réaction (pré-amplificateur et intégrateur). R_f et f_{GBW} sont les paramètres ajustables de la contre-réaction. Ils sont réglables à partir de l'interface de l'électronique à SQUID utilisé.

On définit également le gain de la boucle de contre-réaction, $G(f)$, quand la contre-réaction s'applique effectivement,

$$|G(f)| = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{f}{f_1} \left(\frac{f}{f_1} - 2 \sin(2\pi f t_d) \right)}} \quad (3.5)$$

En traçant G en fonction de $f t_d$, fig.15, on remarque que pour $f_1 t_d > 0,08$, un pic apparaît pour les fréquences les plus hautes, d'où une déformation des impulsions si elles contiennent des composantes rapides. Pour $f_1 t_d = 0,08$, en revanche, on a un gain constant sur une large gamme de fréquence.

Il est important de bien régler la contre-réaction à sa valeur optimale de façon à avoir une gamme de fréquence aussi large que possible présentant un gain égal à 1. Cette précaution est essentielle pour l'homogénéité des impulsions, hypothèse nécessaire pour le traitement des données par la suite (cf. §4.2.4).

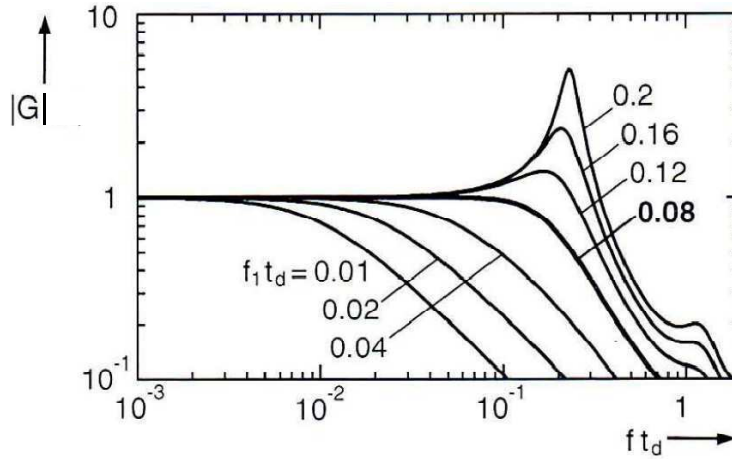


FIGURE 15: Le gain en fréquence associé à une boucle de contre-réaction en fonction de $f t_d$ pour différentes valeurs du gain unitaire en fréquence pour la boucle ouverte réduite, $f_1 t_d$

3.2.2.3 Une électronique à double-étage

Pour réduire au maximum le bruit dû à l'électronique §3.10, on utilise une électronique de SQUID à double étage, fig.16, c'est-à-dire un SQUID de lecture et un SQUID dit de pré-amplification.

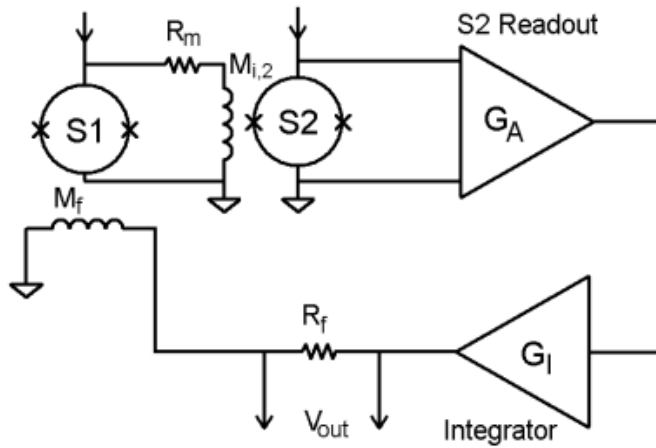


FIGURE 16: Schéma de l'électronique à double étage

Avec l'association d'une résistance R_m et d'une bobine d'injection d'inductance mutuelle $M_{i,2}$, on transforme la tension en sortie du SQUID de lecture en flux magnétique dans la boucle sensible du SQUID de pré-amplification³.

3. l'apport de l'électronique à double étage sur la mesure est chiffré dans le paragraphe 3.3.3

3.3 LES DIFFÉRENTS BRUITS INHÉRENTS AUX MMC

3.3.1 Les fluctuations thermodynamiques

Les MMCs, schématisés simplement, possèdent une capacité thermique totale $C_{\text{tot}} = C_a + C_s$ constante couplée à un bain thermique de température fixe T via une conductance Θ . L'échange aléatoire de l'énergie interne du détecteur avec le bain thermique à travers cette conductance représente une source de bruit appelé bruit (de fluctuations) thermodynamique. Selon la théorie de la thermodynamique, ce système est assimilable à un ensemble canonique. On peut montrer alors que la contribution du bruit thermodynamique à la résolution en énergie d'un calorimètre peut s'écrire :

$$\sigma E_{\text{thermo}} = \sqrt{k_B T^2 C_{\text{tot}}}$$

avec k_B , la constante de Boltzmann.

Pour les calorimètres métalliques magnétiques, cette simple relation est modifiée en fonction des capacités thermiques de l'absorbeur, C_a , du senseur, C_s . La contribution des fluctuations thermodynamiques à la résolution en énergie, communément considérée comme étant la limite intrinsèque de tous les calorimètres, est [FES05] :

$$\sigma E_{\text{thermo}} = \sqrt{4k_B T^2 C_a} \left(\frac{1}{\beta(1-\beta)} \frac{\tau_r}{\tau_d} \right)^{\frac{1}{4}}$$

avec $\beta = \frac{C_s}{C_s + C_a}$, τ_r et τ_d respectivement le temps de montée et le temps de décroissance des impulsions. Ainsi, la diminution du bruit thermodynamique est aussi une raison pour laquelle on travaille à très basse température.

3.3.2 Le bruit Johnson magnétique

Le bruit Johnson magnétique est dû au mouvement thermique des électrons de conduction dans le métal qui engendrent un bruit de flux magnétique dans la boucle du SQUID.

Le bruit Johnson en flux magnétique vu par le SQUID dépend de la température T , de la conductivité électrique σ du métal et de son volume V [VP84]

$$\sqrt{S_{\text{mag}}} \simeq \mu_0 \sqrt{\alpha \sigma k_B T V}$$

avec $\sqrt{(\alpha)}$, facteur de proportionnalité dépendant de la position du métal par rapport à la boucle sensible du SQUID.

Remarque : Dans le cas d'un couplage indirect via un transformateur de flux sous forme de méandre, la sensibilité au bruit Johnson magnétique peut être fortement réduite (voir §4.1.1).

3.3.3 Le bruit du SQUID

Le bruit inhérent au SQUID est essentiellement dû au bruit Johnson des résistances parallèles aux jonctions Josephson.

Pour caractériser le bruit d'un SQUID-dc, trois termes sont utilisés : la densité de puissance spectrale de bruit du flux dans le SQUID, S_{Φ_S} , la sensibilité en énergie, ε_S et le bruit du SQUID $\sqrt{S_{\Phi_S}}$, tel que :

$$\varepsilon_S = \frac{S_{\Phi_S}}{2L_S} \quad (3.6)$$

avec L_S , l'inductance de la boucle du SQUID.

Dans des conditions optimales d'utilisation du SQUID, décrites dans [CBo4], telles que

$$\frac{R}{L_S} = \frac{1}{\sqrt{\pi L_S C}}, \quad (3.7)$$

on obtient :

$$S_{\Phi_S} = 16k_B T \frac{L_S^2}{R} \quad \text{et} \quad \varepsilon_S = 16k_B T \sqrt{L_S C} \quad (3.8)$$

avec R , la valeur de la résistance ajoutée en parallèle des jonctions Josephson afin de supprimer le comportement de type hysteresis T , la température de fonctionnement du SQUID

L_S , l'inductance de la boucle

et C , la capacité des jonctions Josephson.

Ainsi, d'après les équations 3.7 et 3.8,

$$\sqrt{S_{\Phi_S}} \propto L_S^{3/4} \quad (3.9)$$

Cependant, dans la limite des très basses températures, la résolution en énergie du SQUID devrait tendre théoriquement vers la limite quantique, c'est-à-dire, $\varepsilon_S \geq \hbar$ d'où, d'après l'équation 3.6 :

$$\sqrt{S_{\Phi_S}} \propto \sqrt{L_S} \quad (3.10)$$

Cette dépendance du flux de la boucle par rapport à son inductance pour les très basses températures est souvent utilisée dans les différents calculs d'optimisation même si, en pratique, aucune mesure de la résolution en énergie à la limite quantique n'a été réalisée.

Aparté : Pour un couplage direct, l'inductance, L , de la boucle est proportionnelle au rayon, r , de la boucle tel que : $L = \mu_0 \gamma r$ avec γ une constante dépendant de la géométrie.

Ainsi, le rapport signal sur bruit du SQUID donne d'après (3.2) et (3.10) :

$$\text{SNR} = \frac{\frac{\delta \Phi}{\delta E}}{\sqrt{L_S}} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\lambda}} \frac{G}{r^{3/2}} \frac{V}{V_C + C_a} \frac{\delta M}{\delta T} \quad (3.11)$$

avec V , le volume du capteur et c , la capacité thermique des spins par unité de volume. Or, dans le cas d'un couplage direct[FES05],

$$\frac{G}{r^{3/2}} = \sqrt{\frac{2\pi\hbar}{2rV}}G$$

avec h et r , respectivement, la hauteur et le rayon du capteur considéré cylindrique.

D'où,

$$SNR = \sqrt{\frac{\mu_0}{\lambda}} \sqrt{2\pi\frac{h}{r}}G \frac{\sqrt{V}}{Vc + C_a} \frac{\delta M}{\delta T} \quad (3.12)$$

On en déduit ainsi que le volume du capteur permettant d'optimiser le rapport signal sur bruit du SQUID est tel que $C_s = Vc = C_a$.

Une deuxième source de bruit dans le magnétomètre est le bruit dit " $1/f$ ". Contrairement aux autres bruits thermiques, le bruit $1/f$ est moins bien compris. Cependant, il semble que ce bruit soit dû aux électrons non appariés qui sont régulièrement piégés et dé-piégés dans des défauts du matériau. Le spin de l'électron est fixé lorsqu'il est piégé et est différent d'un piège à l'autre. Ainsi, le changement d'orientation des spins des électrons passant d'un piège à l'autre (étant donné l'activation thermique) induirait ce bruit en $1/f$ [KDC07].

Au bruit du SQUID, il faut ajouter celui de l'électronique à température ambiante, $(S_\Phi)_{el}$. La densité spectrale de bruit totale lié à l'utilisation du SQUID est donc

$$S_\Phi = S_{\Phi_s} + (S_\Phi)_{el}$$

Avec un seul SQUID couplé à l'électronique à température ambiante, le bruit de l'électronique domine souvent celui du SQUID et peut même limiter la résolution en énergie d'un calorimètre métallique magnétique.

Pour diminuer la contribution du bruit de l'électronique, on utilise un deuxième SQUID comme premier étage d'amplification, fig.16.

La diminution du bruit avec l'utilisation de SQUIDs à double étage est lié au gain, G_Φ , entre les deux SQUIDs

$$G_\Phi = \frac{d\Phi_2}{d\Phi_1} = \frac{V_\Phi M_{i,2}}{R_m + R_{dyn}}$$

avec Φ_1 et Φ_2 , les flux appliqués à S1 et S2

$M_{i,2}$, l'inductance mutuelle de S2

R_m , résistance qui convertit la tension en sortie de S1 en courant d'entrée de S2

R_{dyn} , résistance dynamique de S1, caractéristique du SQUID utilisé.

La densité spectrale de bruit totale avec une électronique de SQUIDs à double étage s'exprime[Vino2] :

$$S_{\Phi} = (S_{\Phi})_1 + \frac{\frac{4k_B T R_m}{|R_m + R_{dyn}|^2} M_{i,2}^2 + (S_{\Phi})_2 + (S_{\Phi})_{2,él}}{G_{\Phi}^2}$$

avec $(S_{\Phi})_1$ et $(S_{\Phi})_2$, le bruit intrinsèque du flux respectivement dans S1 et S2 et $(S_{\Phi})_{2,él}$, le bruit à la sortie de l'électronique en fonction du flux dans S2.

L'utilisation d'un SQUID de pré-amplification après le SQUID de lecture permet de réduire le bruit de l'électronique d'un facteur de l'ordre de 2.

3.4 LE RÉFRIGÉRATEUR À DILUTION

Le principe d'un réfrigérateur à dilution, fig. 18, repose sur la différence des propriétés quantiques des deux isotopes de l'hélium, ^3He et ^4He [Pob96]. Pour T inférieur ou égal à 0,86 K, ^4He devient superfluide, mais pas ^3He . En devenant superfluide, ^4He devient en quelque sorte "ordonné" et ne présente plus d'entropie. Ainsi, à très basse température, lorsque ces deux isotopes d'hélium sont liquides et mélangés, le mélange se divise en deux : une partie composée seulement de ^3He , et une partie composée majoritairement de ^4He et d'un peu de ^3He dilué. A l'interface du liquide et du pseudo-gaz ^3He , un équilibre se crée : il y a autant de particules du gaz qui se liquéfient que de particules de liquide qui s'évaporent. En pompant les particules du pseudo-gaz ^3He , l'équilibre est rompu. Pour rétablir cet équilibre, des particules du liquide doivent s'évaporer ce qui demande de l'énergie prise au liquide. On refroidit donc le liquide ^3He . Avec ce système, on peut obtenir des températures de l'ordre de quelques millikelvins.

Des descriptions plus exhaustives et détaillées des principes de base des réfrigérateurs à dilution sont référencées dans les articles de Lounasmaa [Lou74] et de Betts [Bet76], [Bet89].

Le dispositif mis en place au Laboratoire National Henri Becquerel pour l'utilisation des calorimètres métalliques magnétiques qui fonctionnent à très basse température (<20 mK) est un réfrigérateur à dilution. Il dispose d'une puissance de $100 \mu\text{W}$ à 100 mK et d'un volume expérimental dont le diamètre et la hauteur utiles sont respectivement de 92 mm et 290 mm pour monter au moins trois détecteurs.

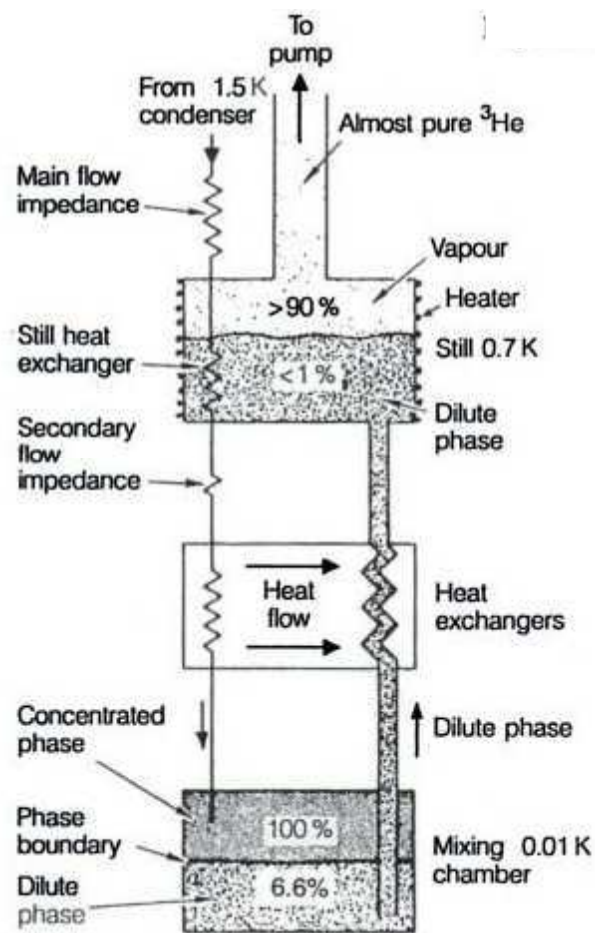


FIGURE 17: Schéma de principe d'un réfrigérateur à dilution. "Phase" désigne ici l' ^3He .

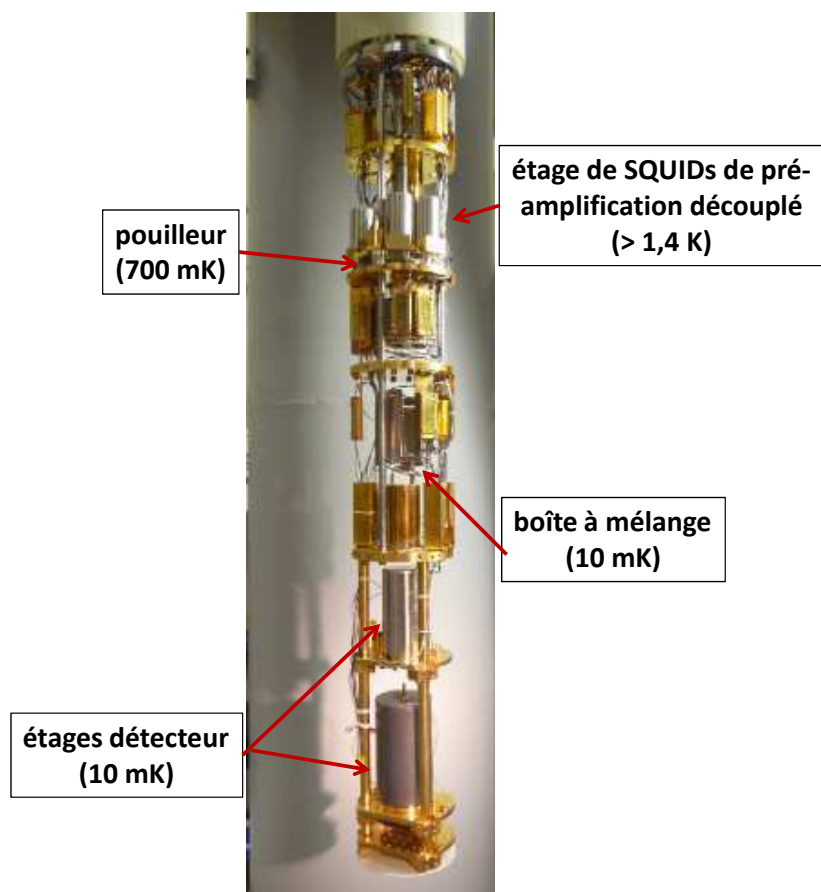


FIGURE 18: Photo du cryostat et des différents étages de température

LE DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET L'ANALYSE DES DONNÉES

Dans ce chapitre, sont présentés les différents constituants du dispositif expérimental ainsi que la méthode d'analyse des données développée pour la détermination sans biais de la forme des spectres β .

4.1 LES DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Comme brièvement mentionné dans le chapitre 3.1.2, les dispositifs expérimentaux peuvent être classés en deux catégories selon la méthode de lecture de variation de champ magnétique utilisée. Ces deux types de couplage magnétique sont décrits dans cette partie : le couplage indirect et le couplage direct. Leurs avantages et leurs inconvénients sont aussi passés en revue permettant de choisir un type de couplage pour nos mesures. Le dispositif expérimental associé est ainsi décrit en détails.

4.1.1 *Le couplage magnétique indirect via l'utilisation d'un transformateur de flux*

Un transformateur de flux consiste en un circuit fermé supraconducteur connectant une bobine de lecture à une bobine d'injection de signal d'un SQUID. Pour diverses raisons explicitées dans [BZo4], il est avantageux de configurer la bobine de lecture en forme de méandre, fig.19.

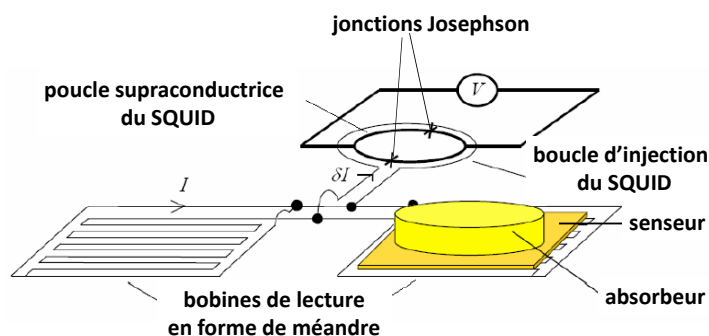


FIGURE 19: Schéma du système de lecture par couplage magnétique indirect via un transformateur de flux en forme de méandre.

Ce type de système de lecture a été fabriqué par le groupe de A. Fleischmann de l'Université de Heidelberg et a montré des résultats très satisfaisants [RKP⁺₁₁]. Dans le cadre d'une collaboration, l'université de Heidelberg fournit des méandres au LNHB. L'étude de ces méandres a été une des étapes d'une thèse sur la spectrométrie γ au sein de notre laboratoire[Rodo7].

La bobine en forme de méandre est réalisée par photolithographie en film mince déposé sur un support en saphir. Le capteur est pulvérisé sur les pistes de niobium qui forment le méandre (fig.20). Il s'agit d'une couche de quelques μm d'une matrice or dopée en ions erbium. Cette couche de métal dopé est recouverte d'une couche d'or électrodéposée d'environ une dizaine de μm d'épaisseur qui permet une meilleure diffusion thermique surfacique entre le capteur et l'absorbeur qui sera collé sur cette couche d'or.

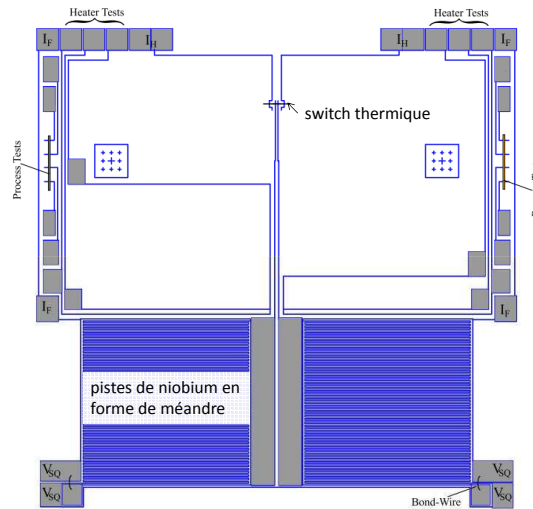


FIGURE 20: Schéma électrique du transformateur de flux en forme de méandre.

Remarque : Dans la suite, on aura recours à l'abus de langage "méandre" pour désigner la bobine de lecture en forme de méandre du transformateur de flux, associée à son capteur et à sa première couche d'absorbeur.

Etant donné le caractère supraconducteur du niobium à basse température ($T_C = 9,4 \text{ K}$), cette bobine de lecture peut également jouer le rôle de bobine de création du champ magnétique. Pour cela, deux bobines de lecture sont connectées en parallèle et forment un circuit supraconducteur fermé. Ainsi, le courant (de l'ordre de 50 mA), parcourant les bobines en forme de méandre, nécessaire à l'établissement du champ magnétique permanent

ne circule pas dans la bobine d'injection du SQUID. En effet, la bobine d'injection n'est pas adaptée à des courants élevés à cause d'un faible courant critique.

Pour la génération ("gel") d'un champ magnétique permanent, un interrupteur supraconducteur -un switch thermique- est placé dans le circuit (fig.20). Il s'agit d'un film en alliage or-palladium placé au-dessus d'une partie du circuit supraconducteur en niobium. Lorsqu'un courant passe dans cet alliage or-palladium, les pistes en niobium se trouvant en dessous sont chauffées par dissipation thermique ce qui les rend résistives. On ouvre ainsi le circuit pour y faire circuler un courant qui sera gelé lors de la remise à l'équilibre thermique de l'ensemble du dispositif.

Cette bobine en forme de méandre est couplée à une bobine d'injection du flux magnétique dans la boucle du SQUID (fig.19). Bobine en forme de méandre et bobine d'injection forment le transformateur de flux.

Le premier avantage de ce couplage indirect est son adaptabilité. En effet, l'utilisation d'un transformateur de flux permet d'adapter la taille du méandre et la taille du senseur en fonction de celle de l'absorbeur, qui dépend elle-même de la gamme d'énergie à mesurer. On peut donc tendre vers l'égalité des capacités calorifiques du senseur et de l'absorbeur qui permet, comme explicité dans le paragraphe 3.3.3, l'optimisation du rapport signal sur bruit du SQUID.

Le second avantage vient de la diminution importante de la contribution du bruit Johnson magnétique généré dans le SQUID avec ce type de montage puisque le senseur et l'absorbeur sont délocalisés par rapport à la boucle du SQUID et le méandre est configuré en gradiomètre très peu sensible au bruit Johnson magnétique.

Dans un premier temps, nous avons cherché à utiliser ce type de couplage pour nos mesures.

L'étape préliminaire à l'utilisation du méandre pour la spectrométrie β est la caractérisation d'un méandre. La caractérisation d'un méandre permet d'évaluer l'aimantation d'un senseur en fonction de la température pour différents champs magnétiques fixes. Pour cela, un cycle de refroidissement complet est nécessaire puisqu'il s'agit de tester la lecture d'un signal avec un méandre à très basse température.

Les premières tentatives ont révélé une faiblesse d'une des structures en film mince au niveau des contacts électriques avec le switch thermique (fig.21, photo de gauche) due à un défaut lors d'un des processus de photolithographie. En effet, lors du nettoyage par bombardement ionique du substrat entre le premier dépôt de niobium et le second, nettoyage nécessaire pour

un bon contact électrique entre ces deux couches, le bombardement, trop intense, fragilisait une partie des films d'alliage or-palladium précédemment déposés. Ce film d'or-palladium qui constitue le switch thermique était alors détruit lors de la descente en froid (fig.21, photo de droite), il nous était impossible de geler un courant dans le méandre supraconducteur. Il a fallu 5 méandres testés avec impossibilité de gel de champ magnétique pour conclure à un défaut de photolithographie systématique. Après un laps de temps de quelques mois, un nouveau lot de méandres nous a été envoyé, des méandres avec une épaisseur de film or-palladium plus importante.

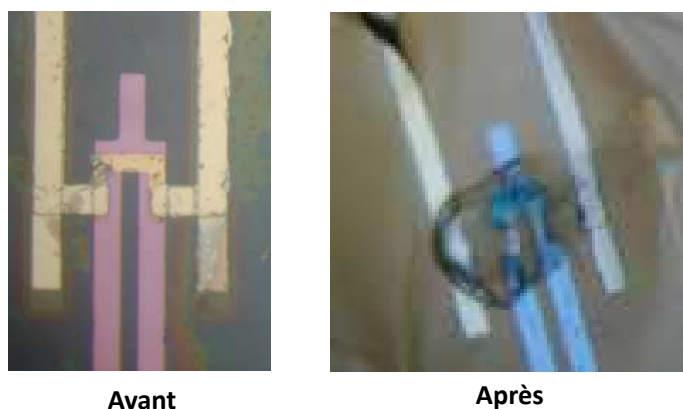


FIGURE 21: Zoom sur le switch thermique avant et après un cycle de froid et une tentative de gel de champ magnétique.

Avec ces nouveaux méandres, nous avons été confrontés à d'autres problèmes, non parfaitement compris encore jusqu'à présent. En effet, lors des différents autres essais (environ 5 tests également), il nous était toujours impossible de geler un champ dans le méandre. Pourtant, à très basse température, contrairement aux cas cités dans le paragraphe précédent, le contact avec le switch et les différents autres contacts électriques étaient encore présents. Après chaque cycle de mesure, à l'observation sous microscope des méandres, aucun dommage sur les pistes n'était visible. Une hypothèse possible suite à ces défaillances serait un court-circuit dans le méandre. Un court-circuit au niveau des pistes de niobium se trouvant sous la couche d'or qui ne serait donc pas visible au microscope. Il est possible que seule une toute petite partie du méandre soit parcourue par le courant ce qui ne suffit pas à l'observation d'une quelconque réponse du senseur.

Les échecs dans l'utilisation de méandres pour nos mesures nous ont poussés après une dizaine d'essais à utiliser le couplage direct.

4.1.2 Le couplage magnétique direct

Le couplage magnétique direct consiste à placer le senseur directement dans la boucle sensible du SQUID (fig.22).

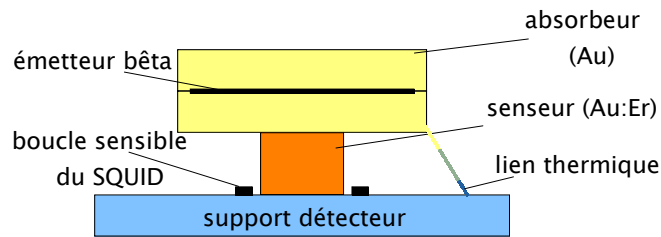


FIGURE 22: Couplage magnétique direct entre senseur et SQUID

Ce type de couplage induit ainsi une contrainte sur la surface du senseur qui doit être normalement inférieure à $2500 \mu\text{m}^2$ ¹.

Pour le couplage direct avec les MMC, l'ordre de grandeur de la taille d'un senseur est de $120 \times 15 \times 50 \times \mu\text{m}^3$, correspondant à une capacité thermique du senseur de $C_s = 3 \times 10^{-13} \text{J.K}^{-1}$ ². Le senseur est plus grand qu'annoncé pour une raison pratique : une partie du senseur sera toujours visible après la soudure avec l'absorbeur (fig.23), il sera donc plus facile de le placer à l'intérieur de la boucle du SQUID.

Pour le ^{63}Ni , $16 \mu\text{m}$ d'or suffisent à arrêter les électrons de la gamme d'énergie considérée³, l'épaisseur totale de l'absorbeur est donc $h_a = 2 \times 16 = 32 \mu\text{m}$. Ainsi, répondre au critère de l'égalité des capacités thermiques du senseur et de l'absorbeur reviendrait à un absorbeur de surface 10^{-5}mm^2 .

Etant donné la fabrication du dépôt radioactif à mesurer, décrit plus en détail dans la suite du rapport, une telle surface pour l'absorbeur est impossible à atteindre. Elle serait d'ailleurs insuffisante pour arrêter les β qui s'échapperaient ainsi par les bords latéraux de l'absorbeur.

La surface typique des absorbeurs avec lesquels on travaille est plutôt de l'ordre du mm^2 . Ce montage par couplage direct ne permet donc pas d'optimiser le rapport signal sur bruit du SQUID. En effet, la résolution en énergie obtenue avec ce montage est environ deux fois supérieure à celle à laquelle on s'attendrait avec un montage optimal. Cependant, pour l'établis-

1. Rappel : la boucle sensible du SQUID a un diamètre de $50 \mu\text{m}$

2. calculé pour $B = 3,8 \text{ mT}$, $T = 20 \text{ mK}$ et 920 ppm d'erbium

3. épaisseur calculée par simulation Monte Carlo arrêtant les électrons jusqu'à 70 keV

sement d'un spectre continu, la résolution en énergie obtenue avec notre dispositif suffit largement.⁴.

Tous les résultats présentés ont été obtenus avec le dispositif basé sur un couplage magnétique direct.

4.1.3 Le dispositif expérimental utilisé

La première étape concerne la fabrication des sources radioactives β .

Les sources utilisées pour les détecteurs métalliques magnétiques sont en marge de celles fabriquées pour les autres types de détecteurs. En effet, deux exigences les caractérisent : une activité relativement faible, de l'ordre de la dizaine de Bq au maximum et une surface active très faible, $< 1\text{mm}^2$.

Dans ce travail de thèse, deux types de dépôt ont été utilisés : un dépôt séché à partir d'une goutte de solution et l'électrodéposition.

Les dépôts séchés de ^{63}Ni sont des dépôts de sels radioactifs obtenus à partir d'une solution radioactive de NiCl_2 .

En ce qui concerne l'électrodéposition de nickel métallique, une solution de NiCl_2 a été utilisée également. Le nickelage est une technique connue et facilement réalisable dans l'industrie. Cependant, nous ne sommes absolument pas dans des conditions industrielles : les volumes de solution et de substrat ne sont pas les mêmes et les concentrations non plus. Il a donc fallu trouver les conditions expérimentales adéquates à notre système, conditions explicitées en détail dans le chapitre 5.2.

Qu'il s'agisse d'une source séchée ou électrodéposée, la source β de ^{63}Ni est par la suite sandwichée entre deux feuilles d'or de $16\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur chacune.

Ces feuilles d'or sont par la suite soudées l'une à l'autre par diffusion thermique à $400\text{ }^\circ\text{C}$. A cette température, la diffusion des atomes dans le volume devient suffisante pour que, placées dans une presse pendant une heure, les deux feuilles se soudent l'une à l'autre. L'ensemble source β et feuilles d'or est appelé absorbeur.

Pour assurer un très bon contact thermique, l'absorbeur est soudé par ultrason au senseur, une feuille d'or dopé en ions erbium d'épaisseur $15\text{ }\mu\text{m}$ et de concentration en erbium de 920 ppm. Cette concentration en ions erbium n'est a priori pas

4. Il est difficile d'évaluer l'impact de l'utilisation d'absorbeurs plus gros puisque un autre bruit d'origine non identifiée est dominant sur nos mesures. On observe, à la sortie de l'électronique, un bruit typique de $2,5 \frac{\mu\Phi_0}{\sqrt{\text{Hz}}}$, trois à cinq fois supérieur au bruit attendu du SQUID dans les conditions optimales

optimale pour une température de fonctionnement de 10 mK⁵. Cependant, à 10 mK, cet alliage, le seul que nous ayons, permet de compenser dans une certaine mesure la différence de capacité thermique entre l'absorbeur et le sensor par une augmentation du nombre de spins du sensor.

Le sensor est ensuite placé dans la boucle sensible du SQUID (fig.23)⁶.

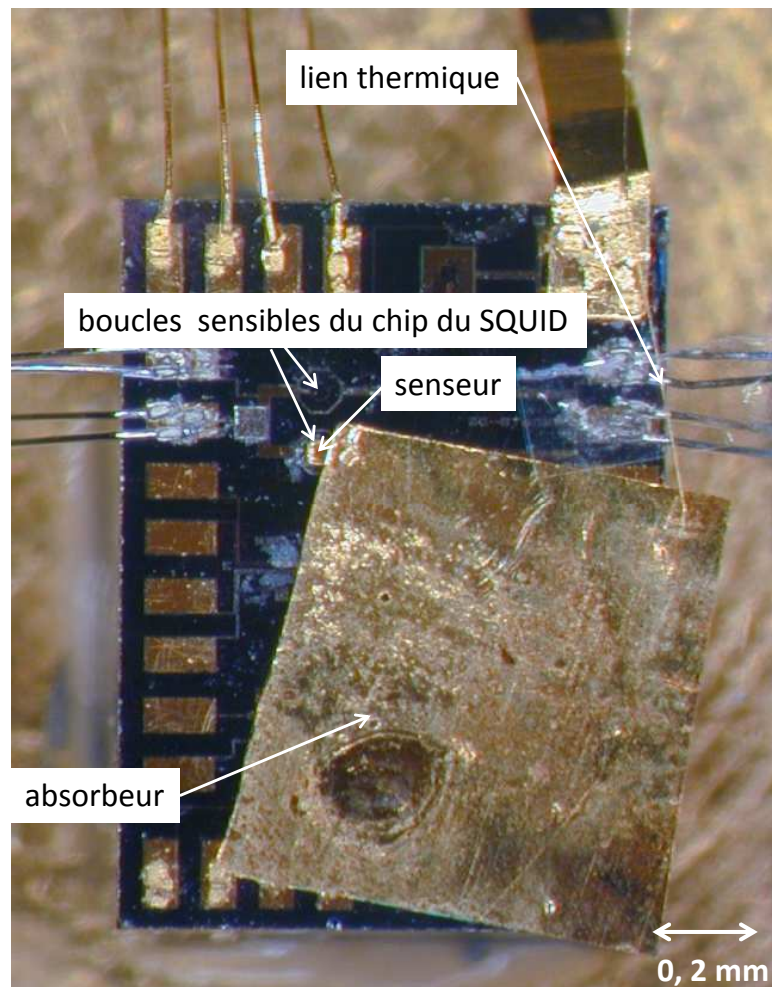


FIGURE 23: Photographie de l'absorbeur soudé au sensor, lui-même placé dans la boucle sensible du SQUID

5. 900 ppm est plus adaptée pour une température de fonctionnement de l'ordre de 50 mK

6. Pour maintenir en place le sensor et lui assurer un certain découplage thermique avec la puce électronique du SQUID, on utilise une très faible quantité de CAF₄, un élastomère silicone. Cette silicone est également utilisée sous forme de petit plot pour soutenir l'absorbeur, -beaucoup plus large que le sensor- pour un découplage thermique de l'absorbeur évitant ainsi des fuites thermiques parasites.

Pour l'aimantation du senseur, la puce électronique du SQUID -et donc l'absorbeur et le senseur associés- est placée au centre d'une boucle supraconductrice formée d'un anneau en plomb ($\phi_{\text{int}} = 10 \text{ mm}$, $\phi_{\text{ext}} = 13 \text{ mm}$ et épaisseur = 1 mm)⁷. En dessous de cet anneau en plomb, à 0,2 mm, se trouve un solénoïde ($\phi_{\text{int}} = 10 \text{ mm}$, $\phi_{\text{ext}} = 13 \text{ mm}$, longueur = 2,5 mm et 250 spires) (fig.24 et fig.25). La proximité de ces deux éléments garantit que le champ magnétique gelé correspond bien à celui créé par le solénoïde.

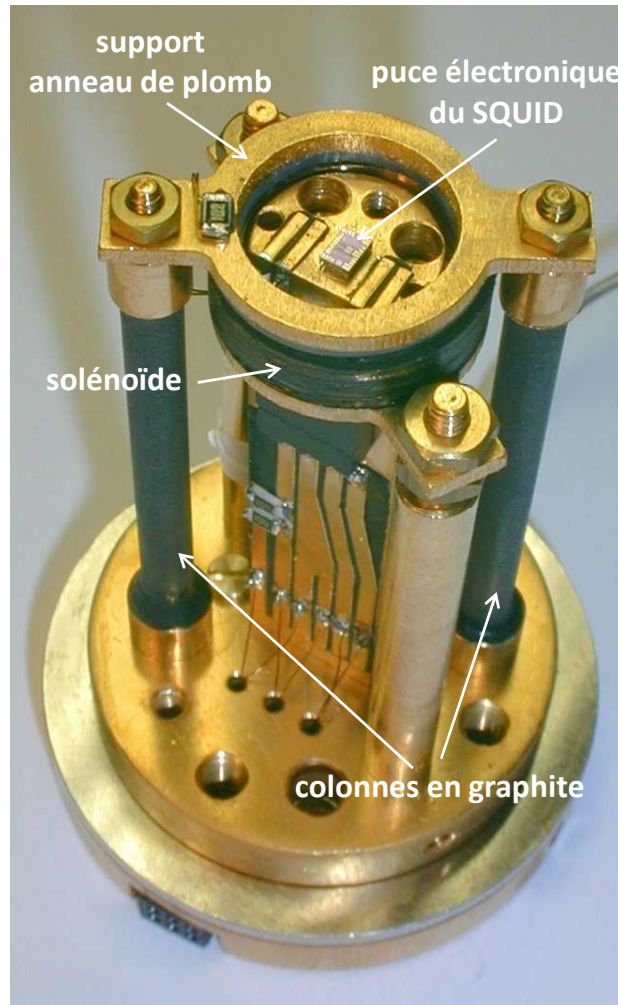


FIGURE 24: Photographie du montage pour le couplage direct utilisé. Montage pensé et construit par M. LOIDL

A très basse température, on injecte un courant dans une résistance de chauffage sur le support de l'anneau en plomb de manière à augmenter sa température au-delà de 7,2 K, sa tempé-

7. avec ϕ_{int} et ϕ_{ext} respectivement le diamètre intérieur et extérieur de l'anneau

rature critique. On injecte alors un courant dans le solénoïde de manière à créer un champ uniforme qui sera piégé par l'anneau de plomb quand celui-ci redeviendra supraconducteur.

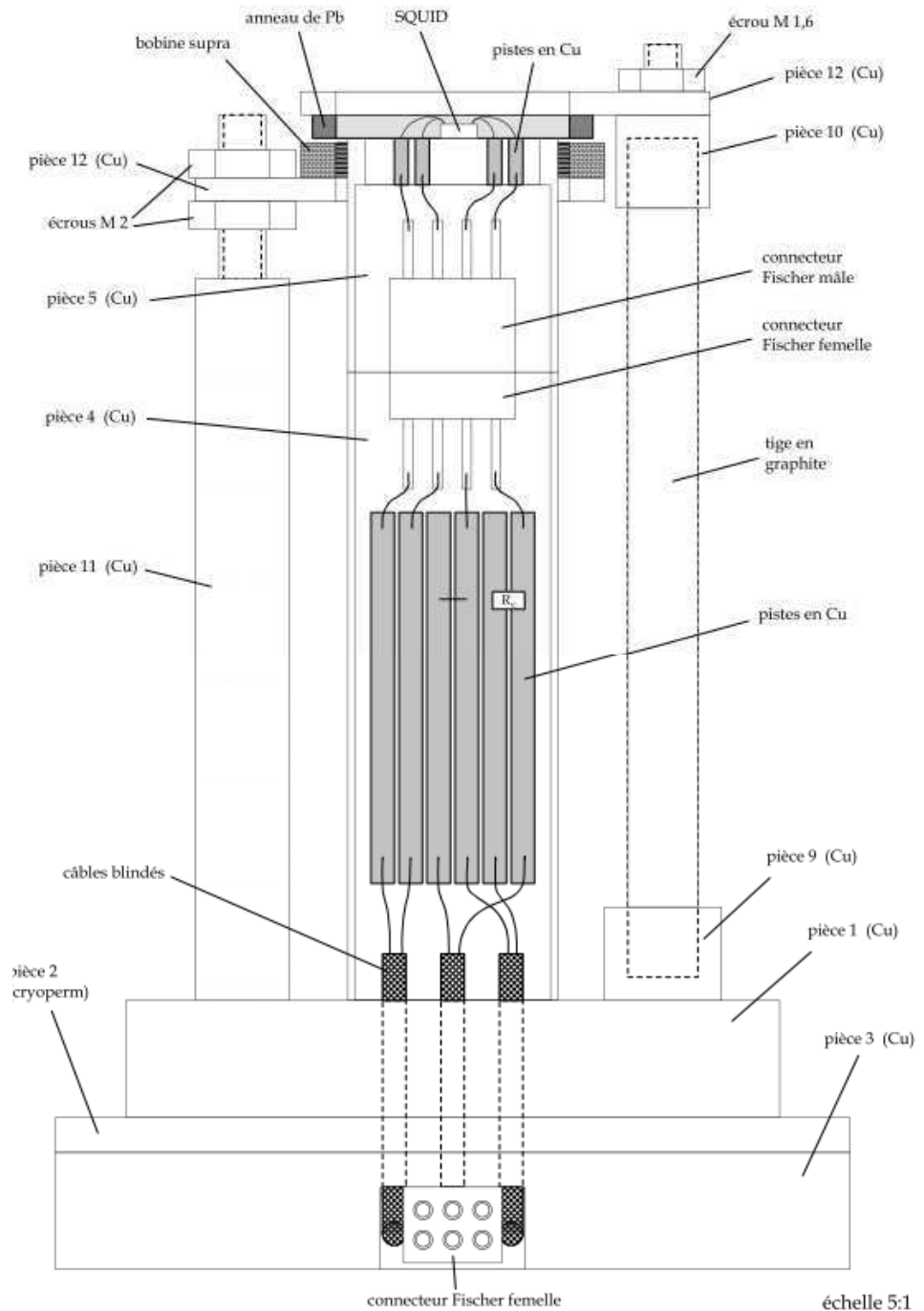


FIGURE 25: Montage d'un calorimètre métallique magnétique pour la spectrométrie β utilisé pour les mesures

Dans le but de communiquer le moins de chaleur possible à l'ensemble du dispositif, l'anneau en plomb est soutenu par des colonnes en graphite, matériau de très faible conductivité thermique (fig.25 et fig.24).

Deux étages supplémentaires sont à ajouter au montage de la figure 25 : l'étage source externe d'étalonnage et l'étage de collimation associé (un exemple de la partie du montage dédiée aux sources externes utilisé pour la vérification de la linéarité est donné en figure 29). En effet, l'étalonnage en énergie du spectre β est fait via une source externe de photons X ou γ . L'angle solide de détection de la source externe est déterminé en fonction du taux de comptage nécessaire dans la raie d'étalonnage et est réglé via le diamètre du collimateur et les distances mises en jeu.

La source d'étalonnage extérieure utilisée pour nos mesures est une source d'américium-241, d'activité environ 1 kBq. Le radionucléide ^{241}Am se désintègre par émission alpha vers le ^{237}Np . La source d'américium émet des photons γ de 59,54 keV avec une intensité d'émission par désintégration de 35,92%. Les autres photons γ de plus faible énergie et les photons X_L du ^{237}Np sont arrêtés par une feuille d'or de 60 μm . La source a été déposée sur l'extrémité d'un cône en plastique. Le diamètre de la source est de 500 μm . La source a été recouverte d'une résine (Stycast 2850 GT) de sorte que les particules α d'énergies allant jusqu'à 5,5 MeV soient complètement absorbées. Un collimateur en or d'épaisseur 1 mm et de diamètre 500 μm est utilisé.

Le montage est blindé, contre d'éventuels champs magnétiques extérieurs et perturbations électromagnétiques qui pourraient perturber la mesure, par un écran en plomb, de forme cylindrique. En considérant un tube supra-conducteur suivant l'axe z , de rayon a soumis à un champ magnétique extérieur, uniforme, le champ magnétique longitudinal et transversal à une hauteur z , respectivement $B_{\text{axial}}(z)$ et $B_{\text{trans}}(z)$ est donné par [Gal91] :

$$B_{\text{axial}}(z) \propto \exp\left(-3.83 \frac{z}{a}\right) \quad B_{\text{trans}}(z) \propto \exp\left(-1.84 \frac{z}{a}\right)$$

Dans le montage utilisé, $a = 15$ mm et $z = 42,5$ mm -définis comme la distance entre l'ouverture du capot en plomb et la boucle sensible du SQUID. Au niveau de la boucle sensible du SQUID, on a un facteur d'atténuation du champ longitudinal (transversal) de 2×10^{-5} (5×10^{-3}).

L'essentiel des pièces du montage, exception faite des colonnes en graphite supportant l'anneau de plomb, est en cuivre, matériau de haute conductivité thermique, permettant une bonne thermalisation du détecteur. Toutes les pièces en cuivre sont dorées pour éviter l'oxydation de leur surface qui pourrait dégrader le contact thermique entre les pièces..

4.2 DES DONNÉES BRUTES AU SPECTRE BÊTA : LE TRAITEMENT DU SIGNAL

Le traitement des données est d'une grande importance pour la spectrométrie. En effet, l'analyse de données doit être robuste et n'introduire aucun biais.

4.2.1 De l'acquisition des données à l'établissement d'un spectre β

Pour un taux de comptage relativement faible, inférieur ou égal à 15 s^{-1} , la rapidité de la diffusion de la chaleur dans l'absorbeur et le lien thermique ajustable permettent de discriminer chaque interaction au sein de l'absorbeur.

Le signal obtenu est donc une succession d'impulsions dont les amplitudes sont proportionnelles à l'énergie déposée dans l'absorbeur par l'interaction de chacune des particules incidentes. En figure 26, une impulsion caractéristique de nos mesures est

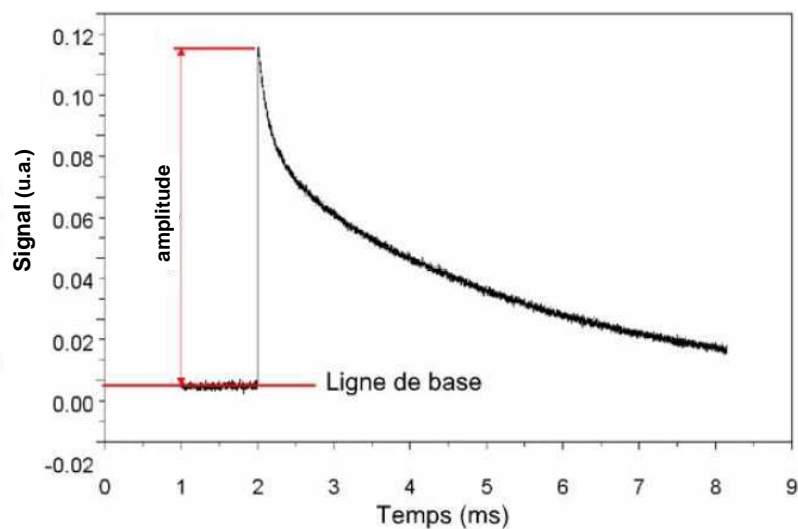


FIGURE 26: Exemple d'impulsion liée à une interaction β dans l'absorbeur

illustrée. La montée de l'impulsion est caractérisée par une exponentielle croissante ayant pour constante de temps quelques dizaines de microsecondes, donnée par le temps de diffusion de la chaleur via les électrons de conduction de l'or.

La descente de l'impulsion est caractérisée par une exponentielle décroissante ayant pour constante de temps quelques millisecondes, dépendant du couplage thermique entre le senseur et le bain.

L'objectif du traitement des données est d'extraire de chaque impulsion son amplitude précise sans introduire de non-linéarité et en diminuant la contribution du bruit pour obtenir un seuil en énergie le plus bas possible. On implémente un filtrage associé à quelques coupures -décrites dans les paragraphes suivants- permettant de s'assurer que l'amplitude qui correspond réellement à une interaction dans l'absorbeur peut être déterminée correctement. Le spectre continu β est par la suite un simple histogramme de ces impulsions sélectionnées. Le principal écueil à éviter est de rendre le traitement des données dépendant de l'énergie mesurée ou inversement.

Les données sont enregistrées de manière continue pendant une durée souvent supérieure à 100 h étant donné le faible taux de comptage ; quelques centaines de milliers de coups au minimum sont nécessaires à l'établissement d'un spectre exploitable.

L'électronique à SQUID est relié à un amplificateur *Stanford* dont le gain est réglable (1 à 50) et la bande passante également ([0,03 Hz ; 1 MHz]). On règle l'amplificateur pour utiliser la plus grande gamme dynamique en tension de la carte d'acquisition (± 2 V). La carte est codée sur 16 bits et peut échantillonner jusqu'à 2,5 MHz.

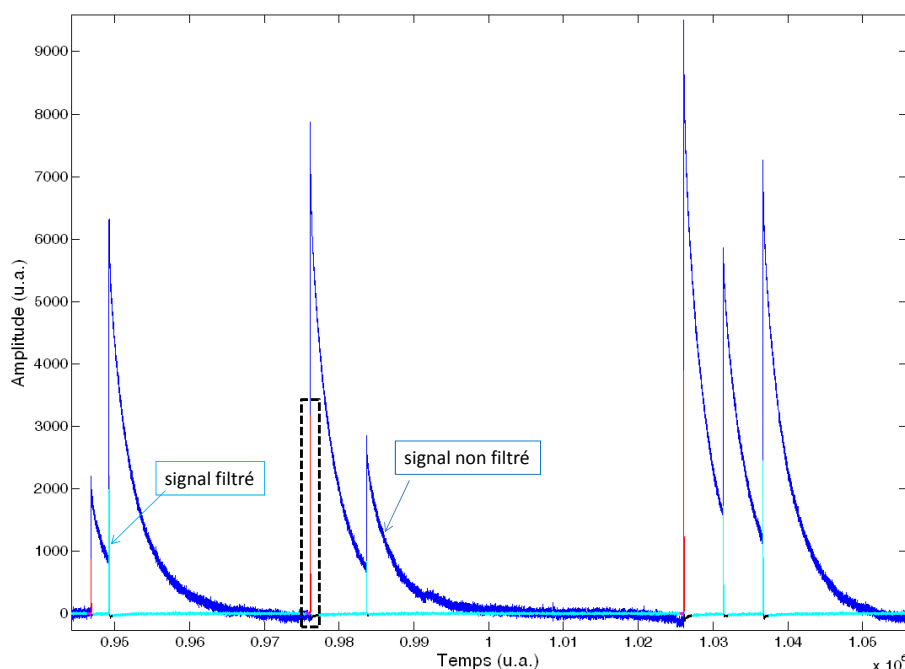


FIGURE 27: Données enregistrées pendant la mesure (exprimées en unités arbitraires (u.a.)). En bleu, les données brutes ; en cyan, les données filtrées. (le rectangle en pointillé montre la partie du signal sur laquelle on fait un zoom en figure 28)

Dans le programme d'analyse des données développé sous Matlab, un filtre basse-bande, dont les fréquences de coupure dépendent des temps caractéristiques des impulsions, est utilisé pour réduire le bruit et fixer à zéro la valeur de la ligne de base. Ce type de filtre permet aussi de ramener rapidement le signal à zéro après chaque impulsion, ce qui minimise les empilements. On perd ainsi l'information sur le temps de descente, qui n'est pas utile pour la détermination de l'amplitude avec notre méthode.

La partie du signal lorsqu'aucune impulsion n'est détectée est appelée ligne de base et représente l'aimantation initiale du thermomètre.

Sur la figure 27, on observe les données expérimentales brutes enregistrées sur la carte d'acquisition en bleu et ces mêmes données, après un filtrage passe-bande, en cyan.

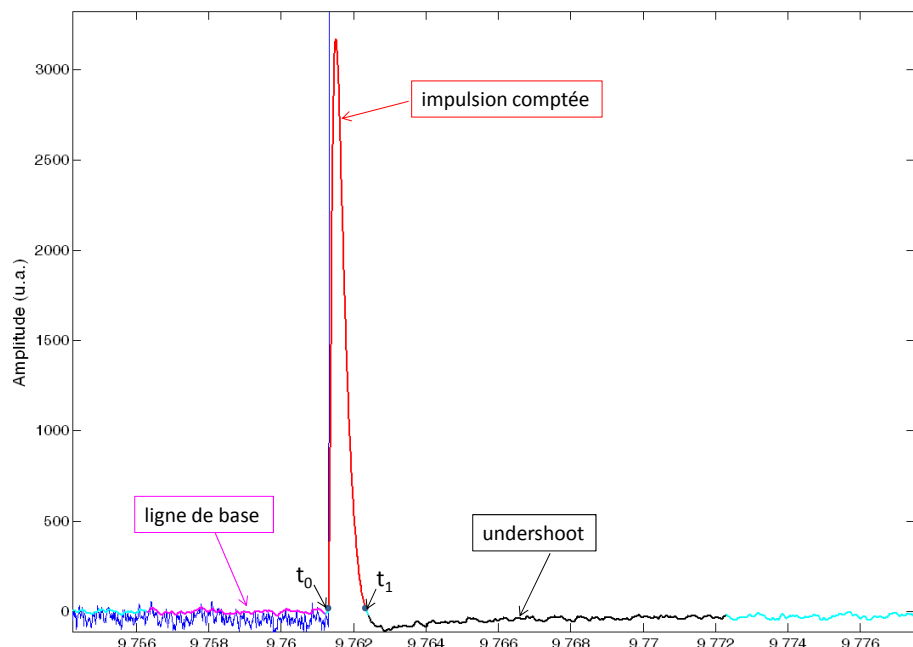


FIGURE 28: Zoom d'une partie de la figure 27. En rouge, les impulsions sélectionnées ; en noir, les undershoots et en magenta, la partie de la ligne de base après filtrage à partir de laquelle des coupures peuvent être faites.

Le filtrage introduit aussi un dépassement de seuil inférieur, un "undershoot", qui correspond à un temps mort dans le processus de lecture du détecteur pendant lequel aucune interaction ne peut être sélectionnée (fig.28, courbe noire). Ce dépassement est détecté via l'implémentation d'un seuil de déclenchement bas.

Le seuil de déclenchement haut pour la détection des impulsions, déterminé en fonction du bruit sur la ligne de base, est inférieur à 100 eV. La durée de l'impulsion est définie entre le

moment t_0 où le signal passe au dessus de ce seuil et le moment t_1 où le signal repasse en dessous de ce seuil. Pour s'assurer qu'aucun bruit ne sera détecté comme impulsion, on applique une coupure concernant la durée de l'impulsion. Si on détecte un dépassement de seuil pendant une durée totale inférieure à 0,3 ms, on déduit qu'il ne s'agit pas d'une impulsion physique et on ne la prend pas en compte dans l'établissement du spectre.

A chaque impulsion, on instaure un temps mort fixe de 10 ms ; temps auquel s'ajoute celui de l'undershoot s'il dépasse un seuil présélectionné.

L'énergie déposée dans le détecteur lors de chaque interaction, c'est-à-dire l'amplitude de chaque impulsion filtrée, est ainsi obtenue par la détermination du maximum du signal entre t_0 et t_1 (courbe rouge sur la figure 28).

L'histogramme de ces amplitudes correspond au spectre β continu.

D'autres critères et vérifications sont ajoutés pour rendre l'analyse la plus robuste possible :

- une mesure de l'écart-type sur la ligne de base est faite pour chaque impulsion détectée permettant une éventuelle coupure post-traitement
- une vérification de l'inclinaison de la ligne de base est implémentée. Il s'agit de vérifier que l'écart entre la valeur du signal en début de ligne de base et en fin de ligne de base est négligeable ce qui permet de s'assurer que nous ne sommes pas sur la fin d'une grande impulsion précédente⁸.
- une mesure du temps de montée est également systématique étant donné l'importance de l'homogénéité des impulsions dans notre analyse, voir paragraphe 4.2.4.

Pour implémenter un traitement des données performant, il est important de bien connaître la physique de son détecteur. Etant donné le type de détection mis en jeu, basé sur une mesure de variation de température, le détecteur est supposé linéaire avec l'énergie. C'est ce que nous avons vérifié dans un premier temps.

4.2.2 Vérification de la linéarité du détecteur

Pour le contrôle de la linéarité, trois sources externes collimatées de rayon X et γ : ^{55}Fe , ^{109}Cd et ^{241}Am , fig.29, permettent d'avoir la réponse du détecteur à des dépôts de différentes énergies connues.

8. Cette condition est indispensable dans la mesure où le temps mort implémenté est en général sous-estimé pour ne pas diminuer drastiquement notre statistique déjà faible étant donné nos taux de comptage.

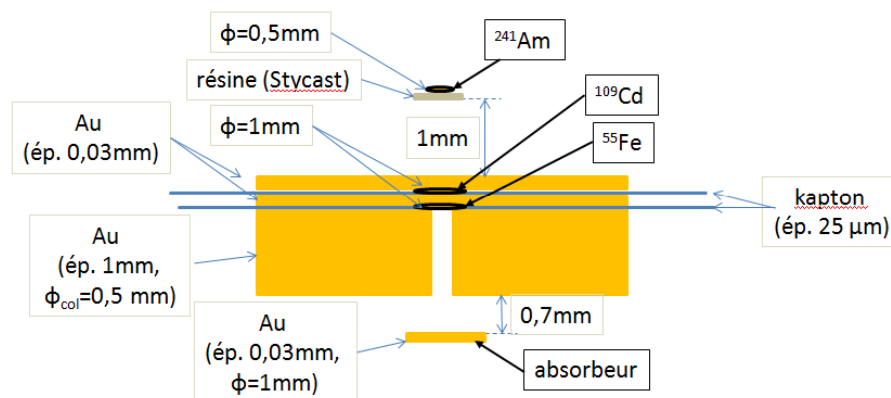


FIGURE 29: Schéma du montage des sources externes pour la mesure de linéarité. La stycast arrête le rayonnement α de la source de ^{241}Am . Les feuilles d'or d'atténuation permettent de laisser passer uniquement les raies d'intérêt listées dans le tableau 4.

Ces trois nucléides ont été sélectionnés pour couvrir la gamme d'énergie du spectre β du ^{63}Ni , fig. 4.

Nucléide	Type de raie	Energie (keV)	Intensité (%)
^{55}Mn (issu de ^{55}Fe)	$X_{K\alpha}$	5,89 – 5,9	25,02
	$X_{K\beta}$	6,51	3,40
^{109}Ag (issu de ^{109}Cd)	$X_{K\alpha 2}$	21,99	29,00
	$X_{K\alpha 1}$	22,16	54,70
	$X_{K\beta 1}$	25	15,14
	$X_{K\beta 2}$	25,48	2,64
	γ	88,03	3,63
^{241}Np (issu de ^{241}Am)	γ	59,54	35,78

TABLE 4: Les raies des sources ^{55}Fe , ^{109}Cd et ^{241}Am utilisées pour la mesure de linéarité.

Chaque amplitude d'impulsion détectée représente l'énergie déposée par une particule. Nous traçons la position des raies observées en canaux (tab.5) en fonction de l'énergie réelle des différentes raies de photons, fig.30.

Remarque : Les raies d'échappement et de fluorescence de l'or ne sont pas pris en compte pour l'évaluation de la linéarité. Les feuilles d'or interposées entre la source et l'absorbeur permettent de filtrer la raie à basse énergie de l' ^{241}Am .

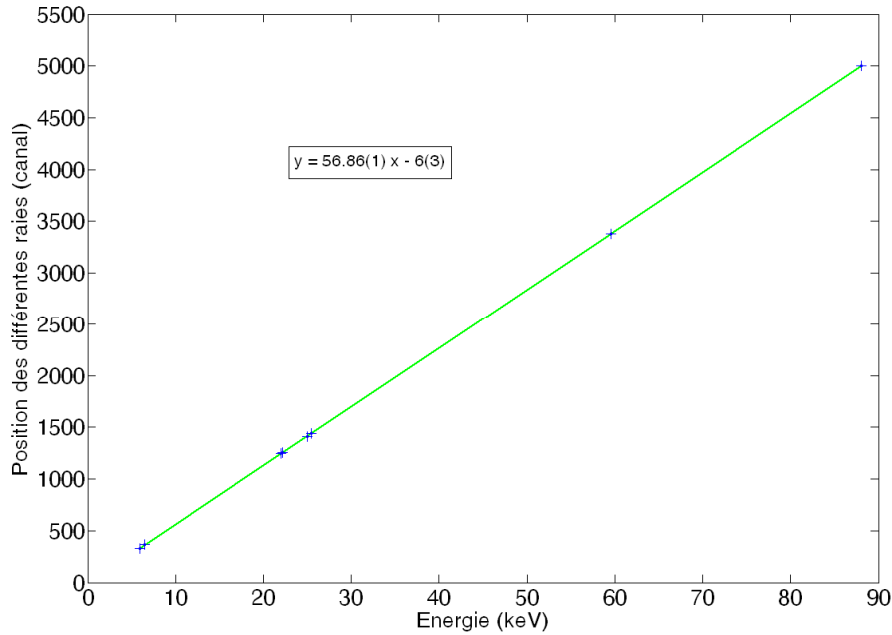


FIGURE 30: Linéarité du détecteur dans la gamme 6 à 88 keV. L'incertitude sur la position des raies est contenue dans la taille des croix.

La résolution en énergie des différentes raies est de l'ordre de la centaine d'eV. L'incertitude sur la position expérimentale des pics est évaluée à 50 eV, ce qui correspond à la moitié de la largeur du canal. L'incertitude sur les énergies théoriques des raies est négligée.

Nous ajustons, sur ces points expérimentaux, une droite dont l'équation paraît sur la figure 30.

En figure 31, les résidus des points expérimentaux par rapport à cet ajustement linéaire sont représentés en fonction de l'énergie.

Dans le tableau récapitulatif 5, l'énergie en canaux calculée à partir de la droite d'ajustement est comparée à l'énergie mesurée.

L'incertitude type sur l'ajustement en un point (tab.5) se calcule avec la formule de composition des variances mais, du fait de la très faible incertitude sur la pente, elle est dominée par l'incertitude sur l'interception entre ajustement et axe des ordonnées, et est donc d'environ 3 canaux. Cette valeur est à comparer à celle des résidus (tab.5 et fig.31).

Nous pouvons constater que les résidus montrent une distribution statistique des points expérimentaux autour de la droite d'ajustement et qu'ils sont tous inférieurs à l'incertitude type sur

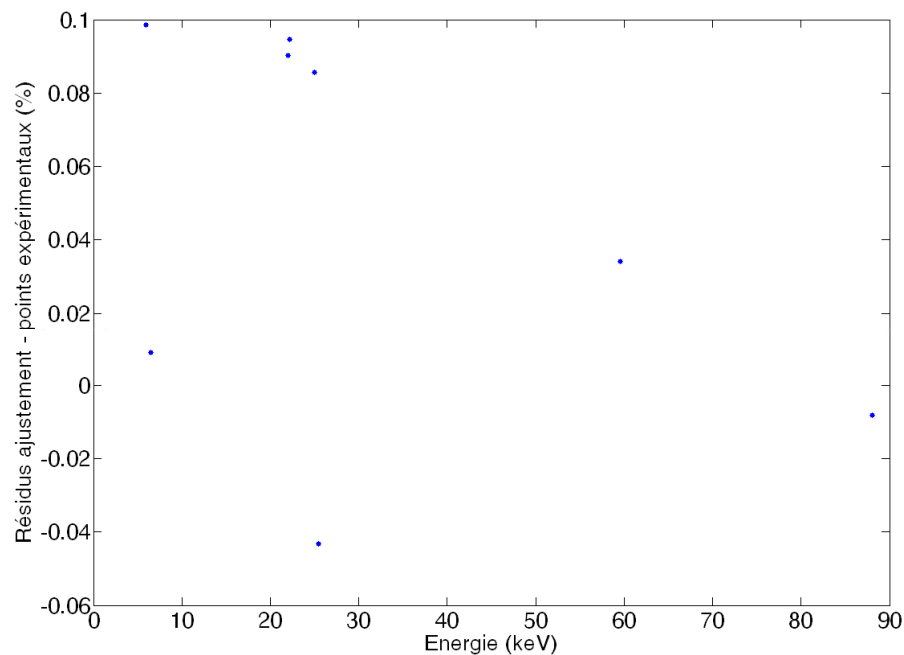


FIGURE 31: Résidus des points expérimentaux par rapport à l'ajustement.

Energie réelle (keV)	Energie mesurée (canaux)	Ajustement énergie mesurée (canaux)	Résidus ajustement-mesure (canaux)	Incertitude type sur l'ajustement (canaux)
5,899	329,751	329,41714	0,33	3,0005
6,49	363,066	363,0214	0,04	3,0007
21,99	1245,56	1244,3514	1,21	3,0080
22,16	1255,29	1254,0176	1,27	3,0081
25	1416,81	1416,585	0,22	3,0101
25,48	1442,27	1442,7928	0,52	3,0108
59,5409	3380,86	3379,49557	1,36	3,0585
88,0337	4999,57	4999,59618	0,03	3,1265

TABLE 5: Tableau récapitulatif de la mesure de vérification de linéarité de nos détecteurs.

l'ajustement linéaire. Nous concluons donc que les résidus sont compatibles avec les incertitudes des points, donc qu'il n'y a pas

de non-linéarité.

De plus, les processus associés au dépôt de l'énergie dans l'absorbeur sous forme de chaleur et à la conversion de cette température en variation d'aimantation sont indépendants de l'énergie. Ainsi, la forme des impulsions présente aussi cette indépendance. Comme présenté dans le chapitre 4.2.4, nous nous assurons que le processus de lecture n'inclut pas de biais quant à la forme des impulsions. Ainsi, lors de l'analyse des données, les formes des impulsions sont homogènes et indépendantes de l'énergie. Pour ces différentes raisons, l'éventualité d'une non-linéarité apparaissant à basse énergie n'est pas considérée.

Le détecteur est donc linéaire dans la gamme d'énergie correspondant à la décroissance β du ^{63}Ni .

4.2.3 *Effet de la dérive en température*

Dans le but d'avoir une statistique élevée des spectres β , les temps de mesure sont longs. On observe ainsi une dérive de la température du cryostat au cours du temps⁹. Or, l'aimantation du senseur et la capacité thermique du détecteur dépendent de la température. Ainsi, la ligne de base, représentant le détecteur à l'équilibre thermique, et l'amplitude d'une impulsion pour une même énergie déposée sont soumises à la dérive de température. Il convient alors de corriger cette dérive au cours du temps.

En ce qui concerne la ligne de base, on utilise en sortie de l'électronique un filtre RC -filtre passe-haut- qui supprime les composantes continues sans affecter le signal utile c'est-à-dire sans affecter les temps caractéristiques des impulsions. Plus précisément, ce filtre RC supprime les variations d'aimantation du senseur dues à la dérive de température de fonctionnement du cryostat.

Pour supprimer l'influence de la dérive de température sur la mesure des amplitudes, on utilise l'amplitude caractéristique d'une raie d'étalonnage. On trace l'évolution de l'amplitude de cette raie en fonction du temps et on ajuste ces données par un spline, fonction définie par morceaux par des polynômes. Ce type de fonction a l'avantage de pouvoir décrire des évolutions très différentes de l'amplitude en fonction du temps.

Les paramètres de cet ajustement sont ensuite appliqués aux amplitudes correspondant à cette raie mais aussi proportionnellement à toutes les amplitudes d'impulsions de façon à avoir

9. L'origine de cette dérive de température n'est pas identifiée. L'essai de régulation de la température de l'étage détecteur n'a pas eu l'effet escompté (la stabilisation au cours du temps de la température du détecteur) sans doute à cause de la grande inertie du thermomètre

l'amplitude de la raie d'étalonnage constante en fonction du temps. La dépendance des amplitudes mesurées en fonction de la température de fonctionnement du cryostat est ainsi corrigée.

Les figures 32 et 33 donnent un exemple de la procédure de correction de dérive de la température et de l'influence de cette dérive dans le cas de la mesure du détecteur MD8 (détecteur décrit au paragraphe 5.1.3).

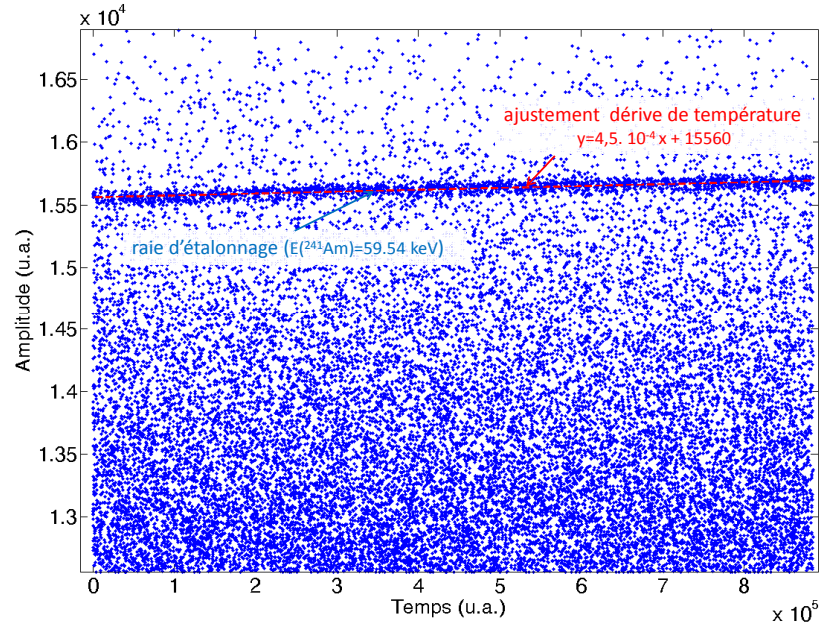


FIGURE 32: Tracé des amplitudes des impulsions détectées en fonction du temps. Zoom sur les amplitudes proches de la raie d'étalonnage.

La figure 32 est un graphe de l'ensemble des amplitudes relevées pour le détecteur en fonction du temps. Plus précisément, nous avons fait un zoom sur les amplitudes proches de la raie d'étalonnage, reconnaissable grâce à la densité de points plus importante dans cette raie monoénergétique. Nous observons une dérive de cette amplitude, synonyme d'une dérive en température, qui, dans ce cas-ci, est relativement monotone ce qui permet un ajustement linéaire (droite rouge sur la figure 32). L'ajustement linéaire permet de calculer une dérive de la température d'environ 0,8 % ($\sim 100 \mu\text{K}$) au cours de la mesure.

L'exemple du MD8 est un cas typique rencontré dans nos mesures : on remarque que la dérive de température est suffisamment faible pour ne pas affecter visiblement la forme du spectre (fig.33). En revanche, cette correction affecte de manière importante la résolution en énergie : une variation d'environ 0,8 % de la température du cryostat¹⁰ implique une variation

¹⁰. la température de fonctionnement du cryostat est de l'ordre de 13 mK

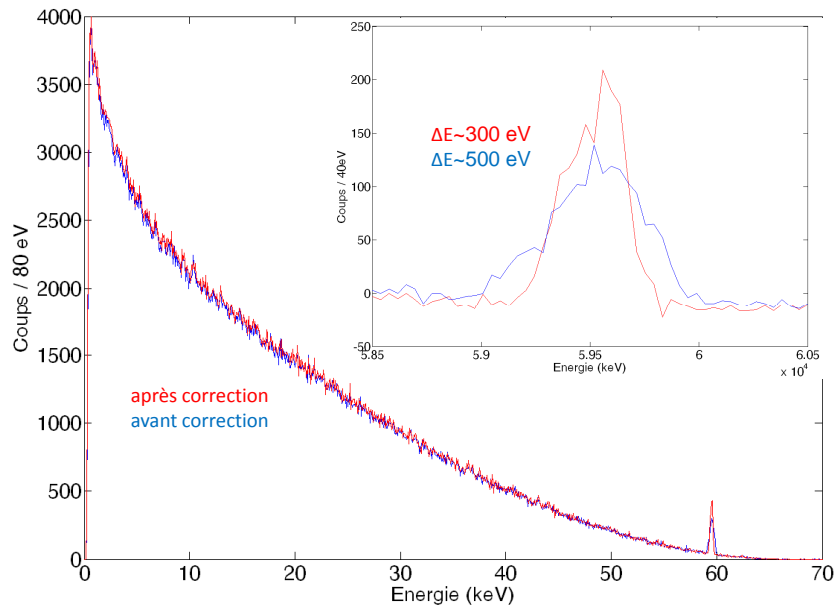


FIGURE 33: Comparaison de spectres issus d'une même acquisition avant et après correction de la dérive en température. Comparaison des résolutions en énergie (en bleu, les données avant correction et en rouge, après).

d'environ 65 % sur la valeur de la résolution en énergie à 59,54 keV. Bien que la résolution en énergie soit moins importante pour la mesure de la forme d'un spectre β que pour l'étude des raies mono-énergétiques par exemple, une bonne résolution en énergie devient nécessaire pour la détermination de l'énergie maximale.

La correction de la dérive de température est donc systématique dans nos traitements.

4.2.4 Effet de la non-homogénéité des impulsions

Le caractère homothétique des impulsions est la condition essentielle pour que le filtrage passe-bande soit correct.

A chaque acquisition de spectre, on associe une seconde acquisition à un taux d'échantillonnage plus élevé, dans le but d'augmenter le nombre de points dans les impulsions. On a ainsi une information plus précise de la forme des impulsions. A la lecture de cet enregistrement à fort taux d'échantillonnage, on vérifie l'homogénéité des impulsions.

Un manque d'homogénéité des impulsions peut avoir deux causes bien distinctes. Il peut s'agir d'un problème au niveau du détecteur :

- une réponse différente en fonction de la position de l'interaction particule/matière (déficit balistique), signe d'un mauvais couplage métallique entre absorbeur et senseur, ou

- un mauvais alignement de la source d'étalonnage avec l'absorbeur : on observe deux populations d'impulsions d'origine X ou γ : celle interagissant dans l'absorbeur et celle interagissant dans le senseur, ou
- des fuites thermiques parasites : une fraction de l'énergie déposée par une particule peut être évacuée sans être mesurée par le thermomètre ; cette fraction dépend de lieu de l'interaction par rapport à la fuite parasite.

La deuxième origine d'une non homogénéité des impulsions peut venir d'un mauvais réglage des paramètres de la contre-réaction du SQUID, comme explicité dans le chapitre 3.2.2.2. Quand la gamme dynamique du SQUID est mal réglée, la vitesse de balayage est trop lente donc le SQUID atteint des parties non linéaires de la caractéristique $V - \Phi$ (fig.13 du paragraphe 3.2.2.1). Dans ce cas, pour des amplitudes supérieures à une valeur donnée, le temps de montée devient linéaire en fonction de l'amplitude.

Avec un filtrage passe-bande, on observe alors un déficit balistique à haute énergie qu'on peut détecter par le relevé des temps de montée.

Une attention particulière doit être apportée aux paramètres de contre-réaction du SQUID qui doit être optimal pour toute la gamme de mesure. Ces paramètres étant corrects, une non-homogénéité dans la forme des impulsions serait alors le signe d'un problème sur le détecteur auquel on doit remédier pour une mesure correcte.

Des impulsions homogènes sont le signe d'un dispositif expérimental correct et d'une électronique de lecture bien réglée, prémices d'une bonne mesure.

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

5.1 RÉSULTATS OBTENUS À PARTIR DE SOURCES DE DÉPÔTS SÉCHÉS

Les dépôts séchés de ^{63}Ni sont des sels radioactifs obtenus après séchage d'une goutte de volume $V = 0,2 \mu\text{l}$ de solution radioactive NiCl_2 , de concentration massique $[\text{NiCl}_2] = 10 \mu\text{g.g}^{-1}$ et d'activité massique $c = 49 \text{ kBq.g}^{-1}$. Le volume de solution utilisée dans nos expériences est tellement faible que la goutte déposée sèche en quelques dizaines de secondes. Ces dépôts ne sont pas homogènes. L'épaisseur moyenne du dépôt, d , est calculée d'après l'équation suivante :

$$d = \frac{V}{A} = \frac{m_{\text{NiCl}_2}}{\rho_{\text{NiCl}_2} A} = \frac{[\text{NiCl}_2] \times m}{\rho_{\text{NiCl}_2} A} \quad (5.1)$$

avec, A , la surface du dépôt. La surface du dépôt est de quelques dixièmes de mm^2 . m_{NiCl_2} et ρ_{NiCl_2} sont respectivement la masse déposée et la masse volumique du chlorure de nickel ; m représente la masse totale de la goutte.

On trouve une épaisseur de dépôt de l'ordre de quelques nm.

Remarque : Etant donné qu'il s'agit d'un spectre continu, même pour des épaisseurs de cet ordre, l'autoabsorption au sein même de la source est possible. En effet, les électrons de plus faible énergie peuvent interagir au sein même de la source. Cependant, notre mesure étant une mesure calorimétrique, les interactions de l'électron à l'intérieur de la source même, donnant lieu à un transfert de chaleur, sont aussi détectées. A condition que la diffusion thermique soit optimale dans l'absorbeur (cf. §5.1.5), le lieu d'interaction n'influence pas la mesure.

Quatre sources séchées différentes ont été préparées ; les caractéristiques des détecteurs associés à chacune de ces sources sont résumées dans le tableau 6.

La même source d'étalonnage est utilisée d'une mesure à l'autre : une source d' ^{241}Am , dont la configuration géométrique présentée dans le paragraphe 4.1.3 permet uniquement l'interaction de la raie γ de ^{241}Am dans l'absorbeur. Les SQUIDS de lecture et de pré-ampli ne changent pas d'une acquisition à l'autre.

Détecteur	MD6(Au)	MD7(Au)	MD8(Au)	MD11(Ag)
source sèche	c, V	c, V	$c' = \frac{c}{5}, V' = 5V$	c, V
$V_{\text{absorbeur}}$ (μm^3)	$1300 \times 1200 \times (14 + 9)$	$1400 \times 1400 \times (2 \times 15)$	$1000 \times 920 \times (2 \times 16)$	$1180 \times 1080 \times (2 \times 15)$
V_{senseur} (μm^3)	$50 \times 150 \times 15$	$60 \times 120 \times 15$	$60 \times 120 \times 15$	$60 \times 120 \times 15$
lien thermique	$\phi = 5\mu\text{m}, l = 0,84\text{mm}$	$\phi = 5\mu\text{m}, l = 0,66\text{mm}$	$\phi = 5\mu\text{m}, l = 0,7\text{mm}$	$\phi = 5\mu\text{m}, l = 0,85\text{mm}$

TABLE 6: Caractéristiques des détecteurs réalisés à partir de sources sèches. (La pureté de l'or des feuilles de l'absorbeur est de 99,999%. La concentration d'ions erbium dans le senseur est de 920 ppm.)

5.1.1 Premier spectre obtenu : MD6

Le premier spectre obtenu à partir d'une source sèche est celui du détecteur appelé MD6 (table 6). Ce spectre est comparé au spectre théorique avec effet d'échange, fig.34¹.

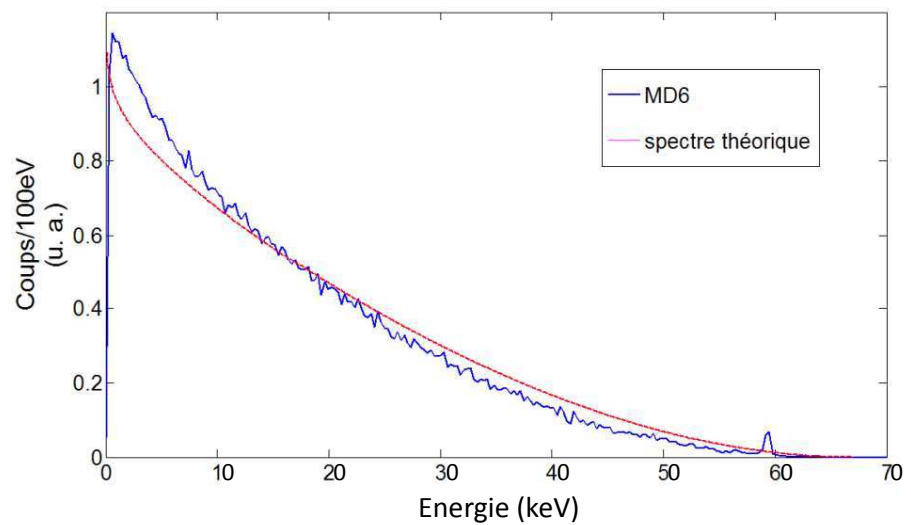


FIGURE 34: Comparaison du spectre MD6 et du spectre théorique. A 59,54 keV, la raie de l'Américium-241, référence pour l'étalonnage en énergie du spectre.

1. à partir de maintenant, sauf mention contraire, l'appellation "spectre théorique" fera référence au spectre théorique incluant le calcul de l'effet d'échange

Note : Tous les spectres présentés sont normalisés de telle sorte que les intégrales de tous les spectres dans la gamme d'énergie de 10 à 50 keV soient égales à l'intégrale du spectre théorique dans la même gamme d'énergie.

Le seuil en énergie obtenu pour cette acquisition est bon : ~ 600 eV, c'est-à-dire 0,9 % de l'énergie maximale du spectre. La résolution en énergie à 59,54 keV de ~ 300 eV est quant à elle en deçà (d'un facteur 10) de ce qu'on peut espérer avec ce type de détecteur².

Le spectre expérimental ne correspond pas au spectre théorique, fig.34. On constate un déficit de statistique à haute énergie qui est transférée vers les basses énergies.

Comme annoncé dans le paragraphe précédent, les sources séchées présentent le désavantage d'être non homogènes. De plus, étant donné l'état de surface des feuilles d'or laminées sur lesquelles s'effectue le dépôt et le faible volume déposé, on ne peut vérifier quantitativement ou qualitativement la qualité du dépôt.

5.1.2 Influence de l'hétérogénéité des sources séchées : MD7

Pour répondre à la problématique de l'influence de la non-homogénéité des sources, nous avons construit un autre détecteur, MD7, à partir d'une source séchée issue de la série de préparation des sources pour le détecteur MD6. Ces sources, bien que préparées de la même manière, ne sont pas identiques puisque le processus de séchage induit une non-homogénéité. Le détecteur MD7 permet donc de tester l'influence de la non-homogénéité sur nos mesures, évaluer l'influence de la qualité de la source sur la forme du spectre β .

La différence au niveau du montage (couplage senseur-SQUID, conductance thermique du lien thermique...) et au niveau des dimensions du senseur et de l'absorbeur peut être à l'origine d'une contribution en bruit différente pour les mesures, mais n'influe pas sur la forme du spectre.

Nous observons une différence significative de la forme du spectre entre les deux mesures allant de 5 % en dessous des 20 keV jusqu'à 20 % dans la gamme de 20 à 40 keV, fig.35. Pour des énergies supérieures, la statistique est trop faible pour une quantification juste.

Bien que l'épaisseur moyenne des sources à l'origine des détecteurs MD6 et 7 soit identique (prouvé expérimentalement par le fait que le taux de comptage soit identique pour les deux mesures), la non homogénéité liée au processus de séchage implique

2. Les éventuelles causes de cette résolution en énergie moins bonne sont discutées dans le paragraphe 5.1.5

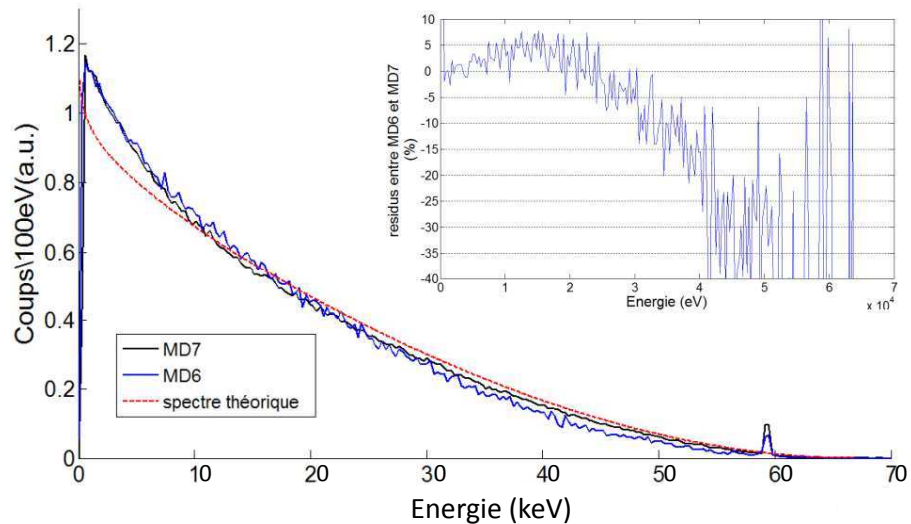


FIGURE 35: Comparaison du spectre MD6 et du spectre MD7. Dans l'encadré, écart en pourcentage entre les deux spectres (le taux de comptage est normalisé par bin).

des épaisseurs locales qui peuvent être très différentes d'une source à l'autre.

On fait alors l'hypothèse de possibles réactions endothermiques au sein de la source dépendant de l'épaisseur de la source à un point donné. Nous nous proposons de tester expérimentalement cette hypothèse via la réalisation d'un troisième détecteur : MD8.

5.1.3 Influence de l'épaisseur du dépôt : MD8

Pour vérifier expérimentalement l'influence de l'épaisseur du dépôt, nous avons déposé un volume de solution plus grand pour une activité similaire. Ce dépôt est à l'origine du détecteur MD8 (table 6).

L'acquisition à partir du détecteur MD8 tend à infirmer l'hypothèse de défauts de chaleur dans la source dépendant de l'épaisseur du dépôt. En effet, si l'épaisseur de la source était en cause, nous nous attendrions à voir une différence notable de la forme du spectre MD8 par rapport aux autres. Or, le spectre de la source plus épaisse est certes différent des deux autres mais la différence est du même ordre de grandeur que celle observée entre MD6 et MD7 (voir graphe et résidus en bleu de la figure 36).

Une autre hypothèse peut être soulevée ici, concernant l'influence de l'environnement sur la mesure.

Cette idée découle du phénomène, appelé "beta environmental fine structure" (BEFS) décrit théoriquement par Koonin[Koo91]

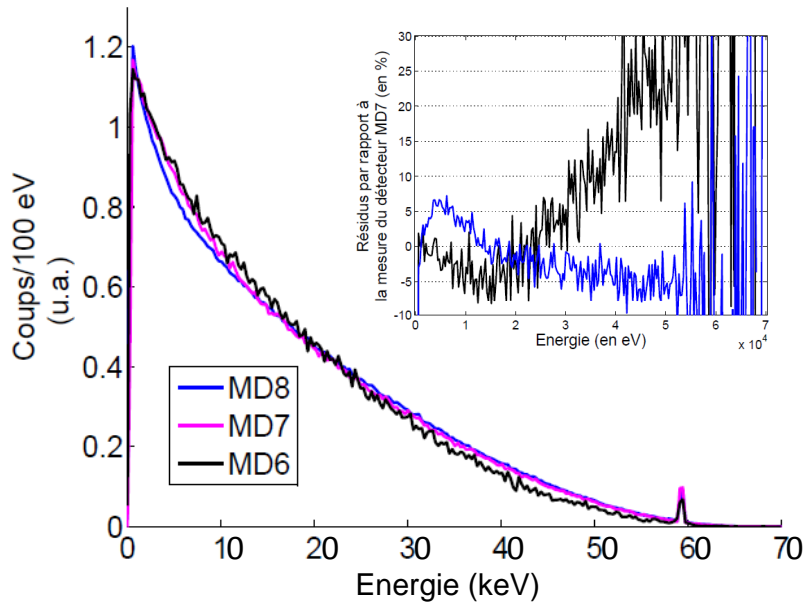


FIGURE 36: Comparaison des spectres obtenus avec des sources séchées. ($\Delta E_{59,54 \text{ keV}} \sim 300 \text{ eV}$). Dans l'encadré, écart en pourcentage entre MD6 (courbe noire) ou MD8 (courbe bleue) et MD7 (le taux de comptage est normalisé par bin).

et observé expérimentalement par Gatti dans [GFG⁺99]. L'effet BEFS s'exprime par une légère oscillation du spectre à basse énergie. Cet effet est dû à l'interférence entre la fonction d'onde de l'électron β émis et celle des atomes voisins.

Dans notre cas, deux échelles d'environnement sont à considérer : l'environnement "de second plan" : le matériau constituant l'absorbeur et l'environnement "de premier plan" : le dépôt lui-même. En effet, il s'agit ici d'une source de sel de chlorure de nickel et une certaine influence de la présence de chlore lié avec le nickel est sans doute à considérer.

L'utilisation d'un absorbeur en argent permet de vérifier ces deux hypothèses. De manière évidente, on change ainsi l'environnement de second plan. Utiliser de l'argent comme absorbeur change aussi l'environnement de premier plan dans la mesure où le chlore va réagir avec l'argent pour former du chlorure d'argent ce qui change la composition chimique du dépôt.

5.1.4 Influence de l'environnement : MD11

Le détecteur MD11 est constitué d'un absorbeur en argent (table 6) qui nous permet de tester l'influence de l'environnement sur la mesure³.

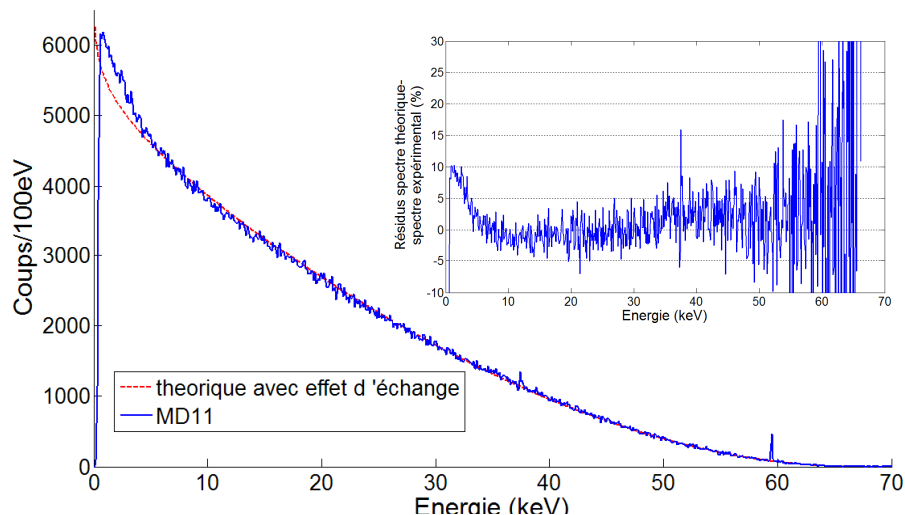


FIGURE 37: Comparaison du spectre MD11 et du spectre théorique. Dans l'encadré, quantification de la différence entre les deux spectres en pourcentage. A 38 keV, on peut observer la raie d'échappement $K\alpha$ de l'argent

Le spectre du détecteur MD11 a une forme très différente des mesures faites à partir des détecteurs en or ; l'adéquation avec le spectre théorique est meilleure sauf à basse énergie, fig.37. Au dessus de 5 keV, spectre théorique et spectre expérimental se superposent presque parfaitement.

Cette mesure avec un absorbeur en argent suggère bien que la nature chimique de la source influe sur la forme du spectre, bien qu'il soit difficile d'expliquer le processus associé. En effet, nous observons une divergence à faible énergie et non pas des oscillations comme dans l'hypothèse de BEFS.

L'hypothèse suivante est alors formulée : la différence de forme observée entre les différents spectres pourrait venir d'un arrangement géométrique des atomes au sein du sel différent d'une source à l'autre. Cette différence d'agencement engendrerait une probabilité de création d'états métastables tels que des défauts dans le réseau cristallin par exemple. En considérant l'énergie nécessaire à ces changements comme piégée dans la source, elle ne serait plus retransmise sous forme de chaleur à l'absorbeur. On

3. La différence de capacité calorifique liée au changement de matériau de l'absorbeur n'a une influence que sur la contribution du bruit à l'ensemble de la mesure.

aurait donc un déficit de chaleur mesurée différent en fonction du dépôt, ce qui expliquerait une forme de spectre différente.

Cette idée de perte d'énergie dans la source sous forme de réaction "chimique" reste encore une hypothèse qui nécessiterait une étude approfondie pour la valider.

Les différents essais avec des dépôt séchés montrent que cette technique de préparation de sources n'est pas adaptée à une mesure précise de la forme des spectres β et ce pour différentes raisons dont la principale est le caractère non reproductible de la préparation des dépôts.

5.1.5 *Discussion sur la résolution en énergie de la raie d'étalonnage*

La résolution en énergie sur la raie d'étalonnage des sources séchées n'est pas très bonne : $\Delta E \sim 300$ eV après correction de la dérive de température. Elle est environ 10 fois plus grande que la résolution sur la ligne de base, qui correspond à la résolution en énergie minimale qu'on peut atteindre sur la mesure après traitement des données. On en déduit que la faible résolution en énergie sur la raie d'étalonnage a une origine physique et ne vient pas du traitement des données.

Le sel de nickel séché qui est utilisé ici comme source β a une température de fusion de 140°C . Lors de la création de l'absorbeur, par soudure par diffusion thermique à 400°C des deux feuilles d'or prenant en sandwich la source β , le sel de nickel hexahydraté perd son eau de cristallisation. On peut alors imaginer que le sel est redistribué et qu'une fine couche de sel sépare les deux feuilles d'or sur toute ou partie de leur surface. Etant donné le faible contact métallique entre les deux feuilles d'or, on aurait, pour la raie d'étalonnage, deux populations d'impulsions selon qu'elles soient issues de l'interaction des photons dans l'une ou l'autre des feuilles constituant l'absorbeur. Cependant, les temps de diffusion proches de ces populations ne permettent pas de voir un dédoublement des raies comme on pourrait s'y attendre. On élargit alors physiquement la gaussienne représentative de l'interaction des photons dans l'absorbeur.

Pour valider cette hypothèse, nous avons procédé à une nouvelle mesure du détecteur MD7 en changeant la source d'étalonnage ; nous avons reproduit la configuration externe des sources d'étalonnage utilisées pour le contrôle de la linéarité, fig.29 et fig.4, §4.2.2. Nous pouvons donc tracer la résolution en énergie en fonction de l'énergie de la raie considérée, fig.38.

La figure 38 montre une anti-corrélation entre la probabilité d'absorption des photons dans la première feuille d'or constituant l'absorbeur (d'épaisseur environ $15\text{ }\mu\text{m}$) et la résolution

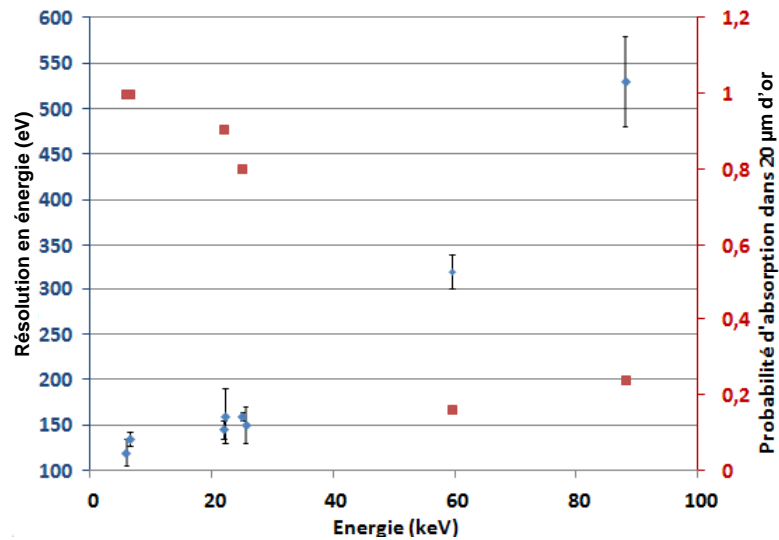


FIGURE 38: Evolution de la résolution en énergie observée avec le détecteur MD7 en fonction de l'énergie (en bleu). En comparaison, en rouge sur le même graphe, probabilité d'absorption de photons de différentes énergies dans une feuille d'or d'une quinzaine de micromètres d'épaisseur.

en énergie observée sur les raies mono-énergétiques. En effet, la résolution en énergie est d'autant meilleure que la probabilité d'absorption du photon, par une seule feuille de l'absorbeur, est grande.

Remarque : La probabilité d'absorption d'une raie monoénergétique de 88 keV est plus grande que celle associée à la raie de 59, 54 keV puisque, à 88 keV, une absorption liée à la fluorescence de la raie K de l'or est possible (voir figure 3 dans le chapitre 1.2.1.1).

Dans un deuxième temps, on a reproduit la même mesure en remplaçant le détecteur MD7 par le détecteur MD14 (présenté dans le chapitre suivant) contenant une source électrodéposée métallique ce qui implique une très bonne diffusion thermique entre les deux feuilles de l'absorbeur. On observe alors une résolution en énergie, de l'ordre de la centaine d'eV, indépendante de l'énergie de la raie photonique.

Ces deux mesures tendent à confirmer l'hypothèse d'une diffusion thermique de mauvaise qualité entre les deux feuilles de l'absorbeur lors de l'utilisation de dépôts de sels séchés comme source β .

En effet, avec un détecteur contenant une source électrodéposée, le lieu d'interaction des photons n'influence pas la mesure.

En revanche, avec une source séchée, si l'interaction a lieu essentiellement dans une seule feuille (probabilité d'absorption dans cette feuille proche, voire égale à 1, pour une énergie de l'ordre de 6 keV), la résolution en énergie sur la raie est équivalente à celle observée avec une source électrodéposée. Pour les énergies supérieures à la dizaine de keV, c'est-à-dire ayant une probabilité d'absorption dans la feuille supérieure de l'absorbeur de plus en plus faible, la résolution en énergie se dégrade de plus en plus. Le lieu d'interaction influence donc le résultat de la mesure, signe d'une mauvaise diffusion thermique entre les deux feuilles constituant l'absorbeur.

Comme montré dans le paragraphe 4.2.3, la résolution en énergie a une influence négligeable sur la forme du spectre.

Cependant, la résolution en énergie prend une dimension importante quant à la détermination de l'énergie maximale du spectre. En effet, une détermination précise de cette énergie nécessite un étalonnage précis, c'est-à-dire une bonne résolution en énergie sur la raie d'étalonnage. Ceci représente un argument supplémentaire pour l'utilisation de sources électrodéposées.

5.1.6 *Influence de la qualité de la source pour une mesure du spectre du ^{241}Pu*

En mesure préliminaire du travail de thèse, une première mesure du spectre du ^{241}Pu a été faite [LRC⁺10]. Plus tard, en parallèle aux différentes mesures de ^{63}Ni , une deuxième mesure du ^{241}Pu a été réalisée. Ce paragraphe présente la synthèse de ces deux mesures : comme pour le ^{63}Ni , les sources séchées ne sont pas adaptées pour la spectrométrie du ^{241}Pu .

Le ^{241}Pu est un nucléide présent dans le cœur des réacteurs nucléaires et dans les déchets nucléaires. La désintégration du ^{241}Pu en ^{241}Am est une transition classée comme 1^{ère} interdite non-unique (§2.1). Son énergie maximale est de 20,8 keV pour une énergie moyenne du spectre de 5,8 keV [AWT03].

La première source mesurée a été obtenue à partir d'une goutte séchée de 0,5 µl d'une solution de nitrate de plutonium. Cependant, préalablement à ce dépôt, une séparation chimique a été faite pour éliminer de la solution l'élément fils de la désintégration, ^{241}Am , dont le rayonnement alpha aurait pu perturber la mesure du spectre β du ^{241}Pu . Ainsi, le dépôt à mesurer contient aussi la substance utilisée lors de cette séparation chimique ce qui donne une épaisseur de l'ordre du micromètre à la source. La source externe d'étalonnage utilisée est une source ^{55}Fe .

La deuxième source mesurée a été obtenue à partir d'une goutte séchée de 0,2 µl d'une solution de nitrate de plutonium également. Contrairement à la première mesure, cette solution étant fraîchement préparée, la quantité de ^{241}Am a été considérée comme négligeable. Ainsi, aucune séparation chimique n'a été faite. Cette source est d'une épaisseur très faible et, contrairement à la première source, elle est presque invisible. Des sources de ^{55}Fe et de ^{109}Cd ont été utilisées pour l'étalonnage en énergie.

Les données obtenues à partir des acquisitions réalisées par M. Loidl ont été traitées avec le programme développé lors de ce travail de thèse (§4.2 et annexe.1). La figure 39 montre les spectres obtenus à partir de ces deux mesures.

La différence d'intensité des raies de ^{55}Fe entre les deux mesures s'explique par une différence de configuration géométrique de la source externe entre la première et la deuxième mesure.

La différence de spectres entre les deux mesures de sources séchées de ^{241}Pu est significative (courbes bleue noire, fig.39). Les sources séchées ne sont pas adaptées non plus pour la mesure du spectre du ^{241}Pu .

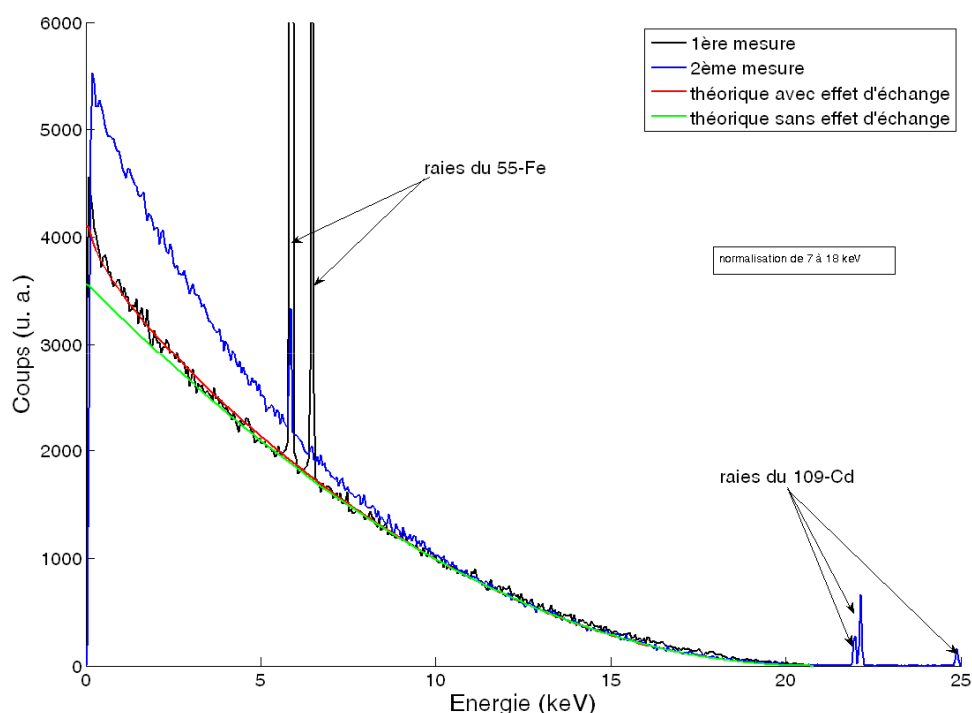


FIGURE 39: Comparaison des deux mesures de ^{241}Pu . Sur le même graphe, tracé du spectre théorique avec et sans prise en compte de l'effet d'échange.

Le cas du Pu confirme les conclusions faites à partir des résultats obtenus à partir des sources séchées de Ni.

Les spectres théoriques ont été obtenus à partir du code BetaShape décrit dans le paragraphe 2.3 et déjà utilisé pour les spectres théoriques du ^{63}Ni . Les calculs à l'origine de la prise en compte de l'effet d'échange dans les spectres théoriques et la comparaison théorie / expérience sont décrits en détails dans un article récemment soumis à publication⁴ [MBL12].

La représentation des spectres les uns par rapport aux autres et leur comparaison dépend beaucoup de la gamme d'énergie choisie pour la normalisation. Dans notre cas, la gamme d'énergie choisie -de 7 à 18 keV- est la même que celle utilisée dans cet article. Elle a été choisie ainsi pour ne pas prendre en compte dans la normalisation l'influence de l'effet d'échange et ainsi le mettre en valeur. La normalisation commence donc à 7 keV, après les raies d'étalonnage et s'arrête à 18 keV pour ne pas être faussée par la statistique basse près du maximum en énergie.

4. xavier.mougeot@cea.fr

Dans une première lecture, la première mesure du spectre du ^{241}Pu (courbe noire) semble en accord avec le spectre théorique prenant en compte l'effet d'échange aux incertitudes statistiques près. Cependant, un zoom aux hautes énergies (fig.40) montre une différence significative entre spectre expérimental et spectre théorique.

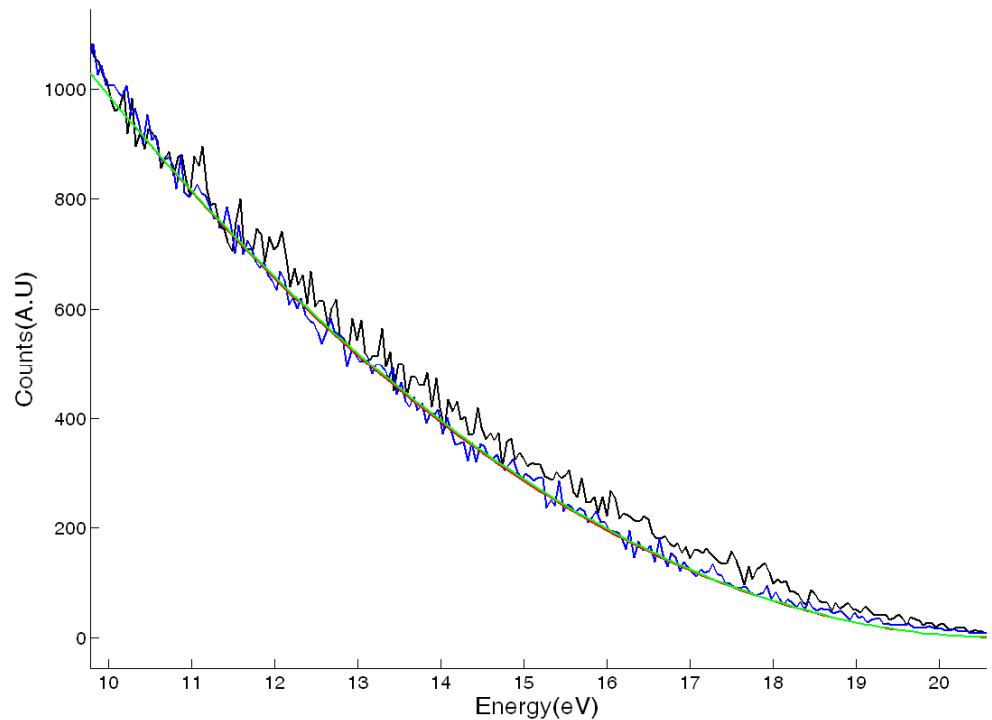


FIGURE 40: Zoom sur la gamme des hautes énergies de la figure 39. Le code couleur est identique à la figure précédente.

Elle peut s'expliquer par une différence au niveau de la valeur de l'énergie maximale théorique et expérimentale, respectivement 20.8 keV et 21.6 keV, différence déjà discutée dans l'article de M. Loidl[LRC⁺10].

Sur la figure 41, l'étalonnage en énergie du spectre expérimental n'est plus fait via les raies du ^{55}Fe mais en fixant la valeur maximale de l'énergie du spectre à 20,8 keV, valeur tabulée.

Nous observons alors un meilleur accord des spectres à hautes énergies mais un net décrochage à basse énergie.

Bien que l'énergie maximale soit connue précisément (20,8 ~ 0,2 keV), nous trouvons des valeurs maximales en énergie du spectre identique pour nos deux mesures, égales à 21,6 keV. La linéarité du détecteur ayant été vérifiée, nous n'avons toujours pas d'explications pour ce déplacement de l'énergie maximale.

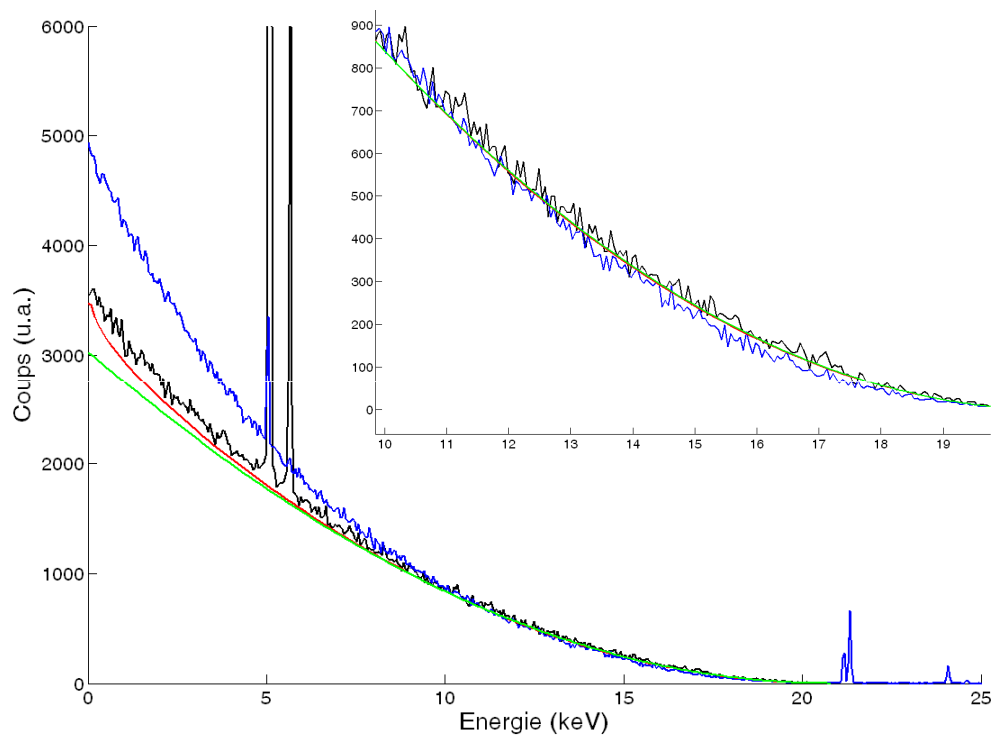


FIGURE 41: Après étalonnage du spectre expérimental en fonction de la valeur de l'énergie maximale, comparaison des mesures de ^{241}Pu et des spectres théoriques avec et sans prise en compte de l'effet d'échange (le code couleur est identique à celui de la figure 39).

5.2 RÉSULTATS À PARTIR DE SOURCES ÉLECTRODÉPOSÉES ET IMPACT POUR LA MÉTROLOGIE

Le deuxième type de source que nous avons cherché à utiliser est une source électrodéposée. Cette technique de préparation avait déjà donné de bons résultats pour la spectrométrie du ^{63}Ni [ABGS98].

Bien que le nickelage soit une technique connue et facilement réalisable dans l'industrie, nous ne sommes pas dans les conditions industrielles : les volumes de solution et de substrat ne sont pas les mêmes et les concentrations non plus. Il a donc fallu trouver les conditions expérimentales adéquates à notre système.

Dans notre cas, les conditions expérimentales pour l'électrodéposition du nickel sur de l'or découlent de celles décrites par A. Malecki[MMI00]. Le bain électrolytique est composé d'un agent réducteur, le sodium hypophosphite et d'un agent complexant, l'acide acétique, dont les concentrations sont respectivement de $0,25 \text{ mol.l}^{-1}$ et de $0,5 \text{ mol.l}^{-1}$ et chauffé à 70°C . A ce bain, il reste à ajouter, dans les bonnes proportions (décrites ci-dessous) le sel qu'on cherche à électrodéposer.

Dans la solution de NiCl_2 radioactive, seule une fraction des atomes de nickel sont radioactifs. Le nickel stable, appelé entraîneur, est présent en majorité dans la solution, $10 \text{ }\mu\text{g.g}^{-1}$, pour garantir une concentration en composés radioactifs constante lors des différentes manipulations chimiques. De même, pour s'assurer d'une activité constante, toute la verrerie utilisée en radiochimie est préalablement rincée avec une solution inactive de composition chimique similaire à la solution active utilisée. Ainsi, on minimise l'adsorption des atomes radioactifs sur les parois de la verrerie.

Les premiers essais sans nickel radioactif ont permis de tester la réaction décrite par Malecki et de la modifier si besoin. Ce qui fut le cas.

En effet, la concentration en sel proposée par Malecki est de $0,1 \text{ mol.l}^{-1}$. Or, la quantité totale de NiCl_2 présent dans la solution radioactive, de volume égal à $0,2 \times 10^{-3} \text{ l}$, est de $0,01 \times 10^{-6} \text{ mol}^5$.

Ainsi, pour atteindre une concentration totale de $0,1 \text{ mol.l}^{-1}$, il faudrait, tout simplement, rajouter du chlorure de nickel non radioactif pour obtenir la concentration voulue avec un volume de solution suffisant. Or, le nickel étant ferromagnétique, il peut apporter une capacité thermique additionnelle non négligeable. Donc, le dépôt de nickel doit être le plus fin possible pour une activité souhaitée d'environ 10 Bq.mm^{-2} . On doit donc maximi-

5. pour le calcul de la masse molaire, il faut prendre en compte que dans cette solution, NiCl_2 est hexahydraté

ser le rapport nickel radioactif/ nickel non actif ; ce qui est en contradiction avec l'idée de rajouter du nickel non actif dans la solution.

La bonne solution est plutôt de changer certains paramètres de la méthode dans le but d'électrodéposer à partir d'une solution de nickel la plus diluée possible.

Différents essais ont montré que la concentration minimale de chlorure de nickel pour laquelle l'électrodéposition est réalisable est de $0,01 \text{ mol.l}^{-1}$ en faisant passer une densité de courant de quelques mA.mm^{-2} . Les conditions finales de l'électrodéposition de nickel métallique sur l'or sont résumées dans le tableau 7.

Concentration de chlorure de nickel (mol.l^{-1})	0,01
Concentration en ions hypophosphite (mol.l^{-1})	0,25
Concentration en acide acétique (mol.l^{-1})	0,5
Volume total de la solution électrolytique (ml)	2
Activité massique initiale de la solution active (kBq.g^{-1})	743
Volume de la solution active ajoutée au bain électrolytique (ml)	0,2
Nature de la cathode	Au
Nature de l'anode	Pt
Température ($^{\circ}\text{C}$)	70
Densité de courant (mA.mm^{-2})	2-5
Temps (min)	2
Activité surfacique (Bq.mm^{-2})	274

TABLE 7: Paramètres pour l'électrodéposition du nickel

Au bain électrolytique non actif, on rajoute $0,2 \times 10^{-3} \text{ l}$ de solution active à 743 kBq.g^{-1} ⁶. Ainsi, la masse de nickel actif est de :

$$m_{63\text{Ni}} = M_{63\text{Ni}} \frac{N}{N_A} \quad (5.2)$$

avec $M_{63\text{Ni}}$ et N , respectivement la masse molaire et le nombre d'atomes de ^{63}Ni et N_A , le nombre d'Avogadro égal à $6,023 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$. Or,

$$N = \frac{A \times T}{\ln 2} \quad (5.3)$$

6. activité massique de la solution radioactive à la date de l'électrodéposition

avec A , l'activité de la solution active et T , la période radioactive du radio-nucléide considéré⁷.

D'où, d'après les équations 5.2 et 5.3,

$$m_{63\text{Ni}} = \frac{M_{63\text{Ni}}}{N_A} \frac{A \times T}{\ln 2} \quad (5.4)$$

$$m_{63\text{Ni}} = 0,07 \mu\text{g}$$

Ainsi, le bain électrolytique actif utilisé contient 0,07 μg de nickel actif pour 1,2 mg de nickel non actif.

L'activité surfacique recherchée pour nos mesures est d'environ 10 $\text{Bq}\cdot\text{mm}^{-2}$. En considérant une surface totale du dépôt de l'ordre du cm^2 , une telle activité équivaut à une masse de nickel actif déposée de l'ordre de 5 ng⁸. D'après le rapport des concentrations, la masse totale de nickel déposée correspondante est de l'ordre de la dizaine de μg , ce qui revient à une épaisseur de dépôt d'une dizaine de nm.

Ce calcul nous donne une idée de l'activité massique qu'on peut obtenir avec l'électrodéposition. Cependant, il n'est utile que pour vérifier la faisabilité d'une source β pour les détecteurs cryogéniques avec ce type de préparation chimique mais n'a pas valeur de référence. En effet, le rendement de l'électrodéposition dans ces conditions n'est pas connu. De plus, *in fine*, l'épaisseur du dépôt n'est pas mesurable expérimentalement puisque les différentes techniques de mesure de profil nécessitent une surface plane pour le dépôt. Les feuilles d'or, sur lesquelles se fait le dépôt, étant des feuilles laminées, la planéité de la surface n'est pas suffisante pour de telles mesures.

Pour caractériser chimiquement notre dépôt, une analyse de fluorescence X du dépôt électrodéposé a été réalisée. L'échantillon, exposé à des rayons X, émet des raies X caractéristiques des éléments présents ce qui permet de déterminer qualitativement les éléments du dépôt. La fluorescence X permet de déterminer la composition élémentaire de la surface de l'échantillon sur une profondeur de quelques μm .

Cette analyse a permis de montrer la non-uniformité du dépôt probablement due à la qualité de la surface des feuilles laminées. Les données qualitatives permettent de vérifier la nature chimique du dépôt : nickel métallique majoritairement et quelques composés de phosphore.

Deux sources électrodéposées sur des supports différents, or et argent, ont été préparées ; les caractéristiques des détecteurs associés à chacune de ces sources sont résumées dans le tableau 8.

7. La période du ^{63}Ni est de 100,1 ans (c'est-à-dire $3,156 \times 10^9$ s)

8. d'après un calcul similaire à celui développé dans le paragraphe précédent

Detecteur	MD12	MD14
taille source électrodéposée (μm^3)	Au, $90 \times 480 \times 10$	Ag, $800 \times 800 \times 16$
taille absorbeur (μm^3)	Au, $500 \times 700 \times (16 \times 2 + 10)$	Ag, $1000 \times 1000 \times (20 \times 2 + 16)$
taille senseur (μm^3)	$50 \times 100 \times 15$	$60 \times 120 \times 15$
lien thermique	$\phi = 5\mu\text{m}, l = 1\text{mm}$	$\phi = 5\mu\text{m}, l = 1\text{mm}$
activité surfacique ⁹ ($\text{Bq} \cdot \text{mm}^{-2}$)	270	10

TABLE 8: Caractéristiques des détecteurs obtenus à partir de sources électrodéposées. (La concentration d'ions erbium dans le senseur est de 920 ppm.)

5.2.1 Premier résultat avec une source électrodéposée : MD12

Le détecteur MD12 est construit à partir du dépôt électrodéposé sur de l'or, tab.8.

On compare le spectre obtenu avec le spectre théorique prenant en compte l'effet d'échange, fig.42.

Le seuil en énergie¹⁰ et la résolution en énergie obtenus pour cette acquisition sont excellents : respectivement, 200 eV, c'est-à-dire 0,3 % de l'énergie maximale du spectre, et 50 eV à 59,54 keV.

La résolution en énergie est nettement meilleure avec une source métallique électrodéposée qu'avec une source séchée de sel. Cela tend à confirmer que c'est bien un contact thermique de mauvaise qualité dans le cas d'un sel séché qui est à l'origine de la mauvaise résolution en énergie sur la raie d'étalonnage.

Pour mieux évaluer la différence entre le calcul et la mesure, nous traçons en figure 43, la différence (en pourcentage) point par point entre le spectre théorique et le spectre expérimental.

A haute énergie, les résidus apparaissent importants, supérieurs à 10 % ; cela est dû à la statistique qui devient trop faible. Jusqu'à environ 50 keV, l'accord entre spectres expérimental et théorique est très bon : on observe des résidus de 5 %, dû à une statistique insuffisante. Aucune tendance n'est observée dans ce graphe : les résidus montrent une distribution statistique des

¹⁰. la plus basse énergie détectée pour un rendement de détection de 100 %

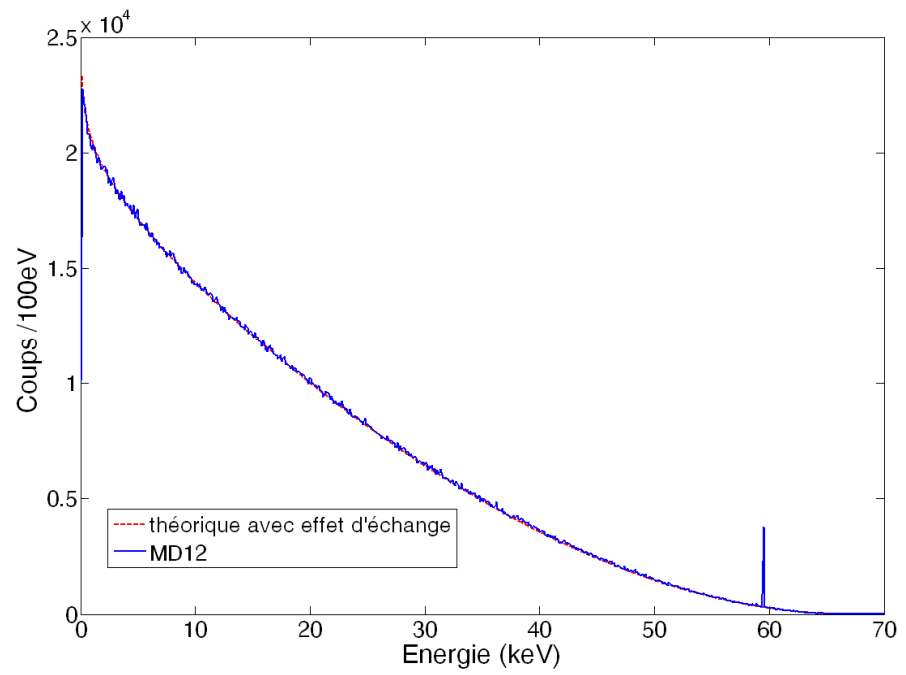


FIGURE 42: Comparaison du spectre mesuré avec le détecteur MD12 et du spectre théorique.

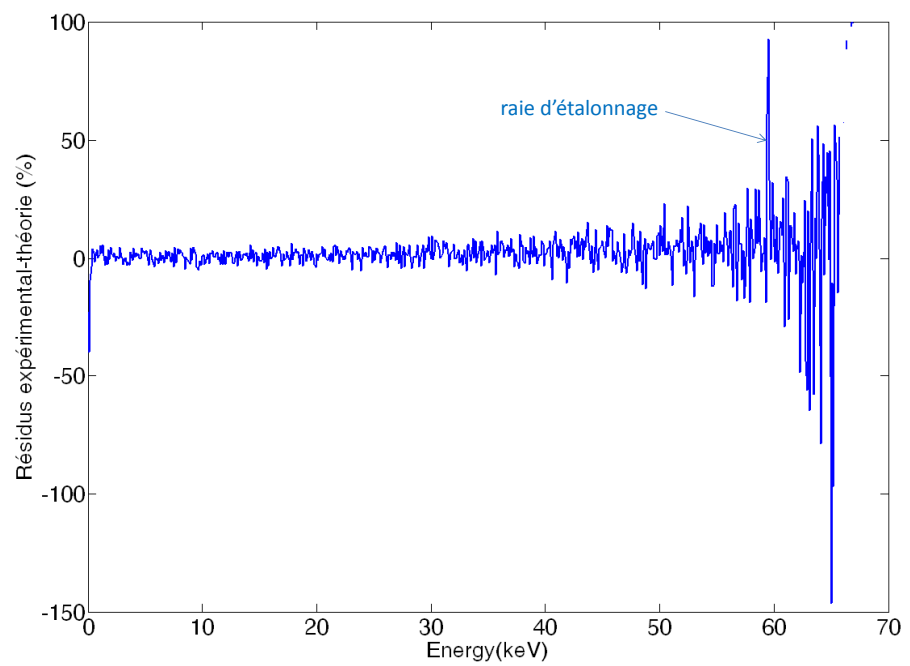


FIGURE 43: Résidus entre spectre expérimental et spectre théorique, calculé point par point et exprimé en pourcentage.

points expérimentaux autour du spectre théorique.

Nous pouvons donc conclure que le spectre expérimental valide le calcul théorique de l'effet d'échange à partir de 200 eV. En effet, spectre théorique et spectre expérimental sont superposables sur toute la gamme d'énergie considérée. Jusqu'à présent, l'effet d'échange n'avait été observé expérimentalement qu'au delà des 8 keV par L.C. Angrave [Angoo]. Notre mesure permet de valider cet effet dans la gamme d'énergie où son influence est la plus forte.

En effet, dû à l'effet d'échange, on observe une augmentation de la probabilité d'émission des électrons par rapport à la probabilité d'émission calculée sans effet d'échange, surtout à basse énergie, fig.44.

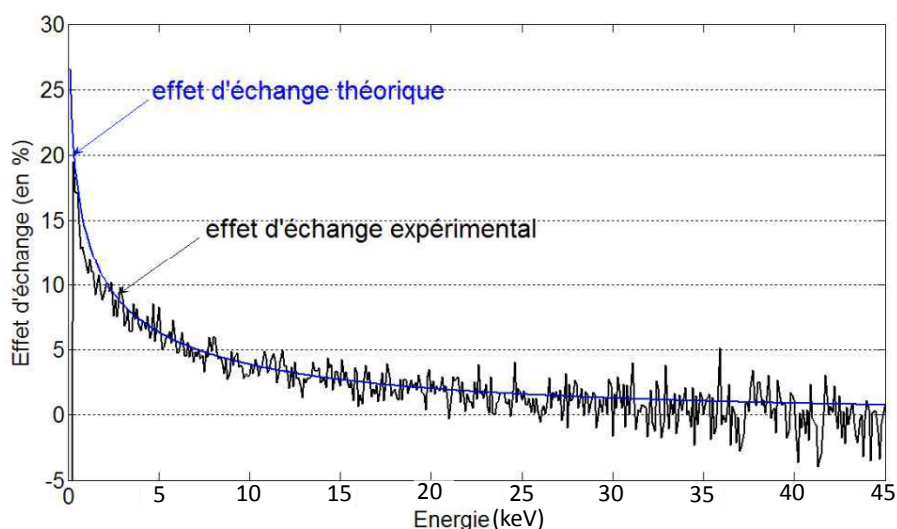


FIGURE 44: Comparaison entre l'effet d'échange calculé et l'effet d'échange mesuré

L'effet d'échange expérimental est le rapport du spectre expérimental au spectre théorique calculé sans effet d'échange. Les valeurs théoriques de l'effet d'échange ont été calculées par un théoricien du LNHB ; ce travail est soumis à publication.

L'influence de l'effet d'échange sur la forme du spectre est de plus en plus importante à mesure que l'énergie diminue. Ainsi, alors qu'à 1,2 keV, l'augmentation théorique de la probabilité d'émission due à l'effet d'échange est de 13 % (12 % trouvé expérimentalement), elle est de 20,5 % à 300 eV (19,5 % expérimentalement).

Cet effet est non négligeable et l'impact sur les techniques de mesure d'activité les plus courantes doit être vérifié, §.5.2.3.

Une autre grandeur importante de la décroissance du ^{63}Ni est influencée par cet effet augmentant la probabilité d'émission, il s'agit de l'énergie moyenne de l'émission β . En effet, **l'effet d'échange induit une diminution de 2,2 % de l'énergie moyenne, la faisant passer de 17,43 à 17,05 keV.**

La forme du spectre étant conforme à la théorie, nous avons comparé la courbe de Kurie expérimentale et théorique (fig.45).

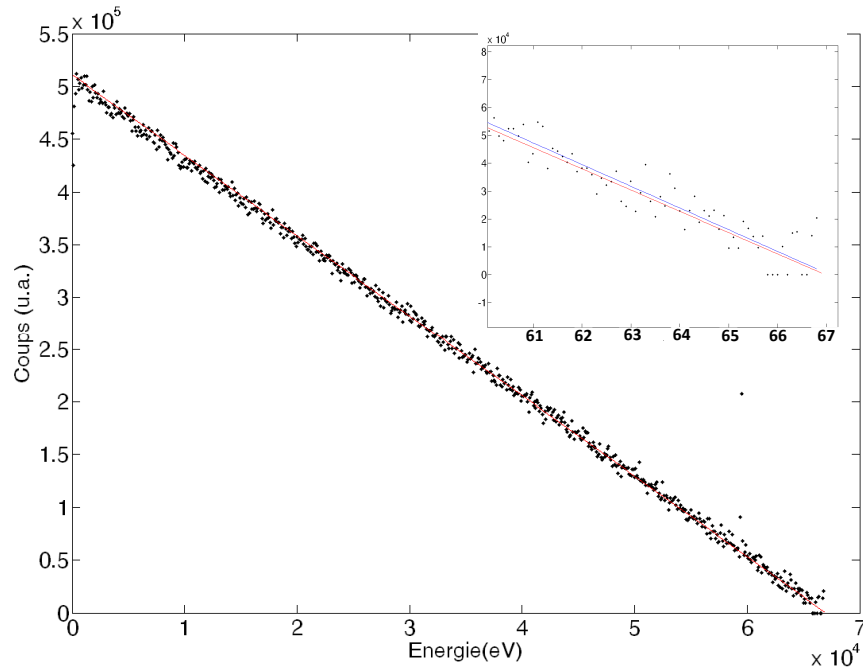


FIGURE 45: Comparaison de la courbe de Kurie théorique (en rouge) et expérimentale (points). En encadré, zoom sur la partie proche du end-point ; en bleu, l'ajustement linéaire des données expérimentales entre 60 keV et la fin du spectre.

La courbe de Kurie théorique est une droite d'équation $y = E_0 - E$ (d'après l'équation 2.29 dans le chapitre 2.2.5). La courbe de Kurie expérimentale est la racine carrée du ratio du spectre expérimental par rapport au spectre théorique, résultat auquel on multiplie $(E_0 - E)$.

La comparaison des courbes de Kurie théorique et expérimentale semble à première vue confirmer l'observation de la figure 42 : une superposition théorie / expérience. Pour donner la valeur expérimentale du maximum en énergie du spectre, nous effectuons un zoom à haute énergie, proche du maximum du spectre β et une régression linéaire à partir des points expérimentaux entre 60 keV et la fin du spectre (voir encadré de la figure 45).

A partir de l'ajustement, la valeur du maximum est de $67,176 \pm 0,123$ keV à comparer à la valeur théorique de $66,980 \pm 0,015$ keV. L'incertitude sur la valeur expérimentale donnée ici est déduite

de l'écart-type sur les coefficients de la droite d'ajustement des points expérimentaux (droite bleue sur la figure 45), conséquence du manque de statistique du spectre à ces énergies. A cette incertitude liée à l'ajustement des points expérimentaux, il faut ajouter la résolution en énergie à 59,54 keV qui est de 50 eV.

Finalement, on obtient une valeur maximale de $67,176 \pm 0,173$ keV. Ainsi, à une incertitude élargie de 2σ , cette valeur est en accord avec la valeur théorique.

Nous avons testé la reproductibilité de la préparation des sources en procédant à une électrodéposition sur un support différent, sur une feuille d'argent.

5.2.2 Test de reproductibilité de l'électrodéposition : MD14

Le détecteur MD14 est construit à partir du dépôt électrodéposé sur de l'argent, tab.8.

La différence d'activité surfacique entre les dépôts sur l'or ou sur l'argent vient probablement de la différence de potentiel d'oxydo-réduction entre les deux substrats.

On compare le spectre du MD14 avec le spectre obtenu à partir d'un dépôt électrodéposé sur de l'or (MD12) et avec le spectre théorique, fig.46.

Le spectre mesuré avec une source électrodéposée sur de l'argent confirme la mesure du détecteur MD12.

Le seuil en énergie obtenu pour cette acquisition est correct : 700 eV, c'est-à-dire 1 % de l'énergie maximale du spectre. La résolution en énergie à 59,54 keV est de 280 eV, moins bonne que celle obtenue avec le même détecteur lors du contrôle de la linéarité (cf.§4.2.2). Ceci s'explique par une instabilité de la température de fonctionnement du réfrigérateur lors de la mesure du spectre du MD14. En effet, nous avons observé des oscillations, d'origine inconnue, de période 30 min et d'amplitude 300 μ K sur la ligne de base pendant toute la durée de la mesure. La correction de dérive de température ne permet pas de suivre toutes ces oscillations sur une centaine d'heure. Ces oscillations affectent donc la capacité thermique du détecteur. Pour donner un ordre de grandeur de l'influence de ces oscillations sur la mesure et plus précisément sur la résolution en énergie, on utilise la relation, $\Delta T/T = \Delta E/E$. La capacité thermique étant proportionnelle à la température, une variation d'environ ± 150 μ K implique une variation maximale en énergie sur la raie de 59,54 keV d'environ 600 eV. Cette variation maximale correspond dans une première approche à la largeur à la base de la gaussienne (6σ) représentative de la raie de l' ^{241}Am . Ainsi, on trouve une contribution supplémentaire à la résolution en énergie due à ces oscillations

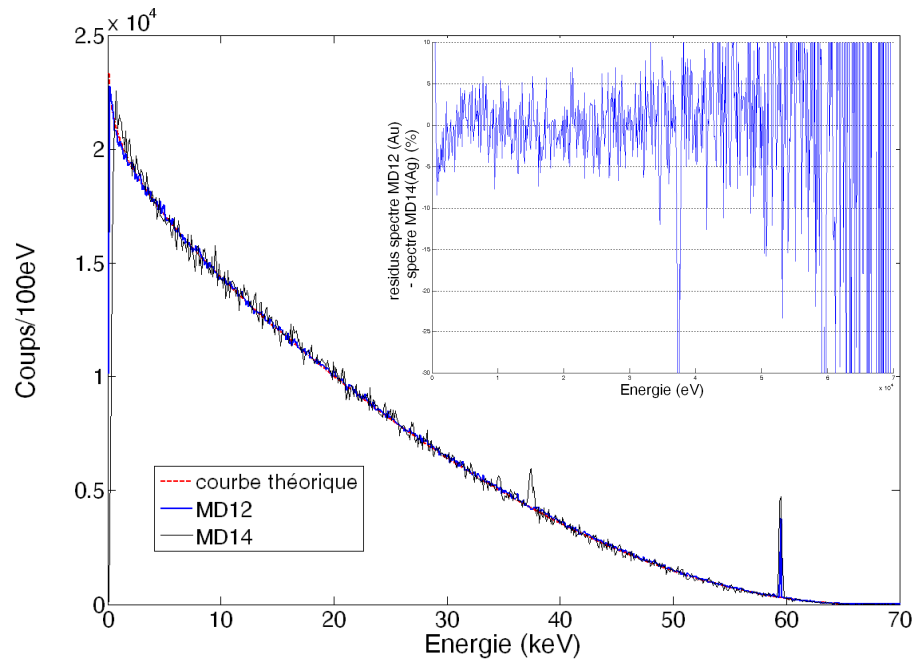


FIGURE 46: Comparaison du spectre MD14, du spectre MD12 et du spectre théorique. Dans l'encadré, quantification de la différence entre les deux spectres expérimentaux en pourcentage. Les raies d'échappement de l'argent $K\alpha$ et $K\beta$, respectivement à 38 et 34 keV sont visibles sur le spectre.

de l'ordre de 200 eV qui correspond bien à la différence de résolution en énergie observée entre les deux mesures faites à partir du détecteur MD14.

Nous pouvons conclure, qu'en ce qui concerne l'élément nickel, l'électrodéposition de métal sur un substrat est une technique reproductible, au rendement d'électrodéposition près, dépendant du substrat.

5.2.3 *Impact de l'effet d'échange sur la métrologie de l'activité : exemple de la mesure de l'activité du ^{63}Ni en scintillation liquide*

L'effet d'échange comme nous l'avons vu a une influence non négligeable sur la forme du spectre et en conséquence sur l'énergie moyenne. Dans le contexte de la métrologie de l'activité, la méthode de référence pour la normalisation des solutions de ^{63}Ni est la méthode RCTD, acronyme de Rapport des Coïncidences Triples et Doubles, en scintillation liquide. Dans cette méthode, l'activité du ^{63}Ni peut être calculée à partir du rapport des taux de comptage mesurés des coïncidences doubles et des coïncidences triples, en utilisant le modèle décrit dans [BCK07].

Le rendement de détection de ce type de mesure, R , dépend du spectre en énergie normalisé du nucléide à mesurer, $S(E)$ tel que :

$$R = \int_0^{E_{\max}} S(E) P(E) dE \quad (5.5)$$

avec $P(E)$, probabilité de détection d'un événement coïncident (double ou triple) d'énergie E donnée. $P(E)$ dépend du rendement lumineux intrinsèque du scintillateur et aussi d'un paramètre, le paramètre de Birks, décrivant la non-linéarité du scintillateur. Pour un liquide scintillant de fort rendement (c'est-à-dire Ultima Gold, Perkin Elmer) et en considérant le spectre sans effet d'échange, le rendement de détection en double coïncidence est de $(0,7954 \pm 0,0038)$ pour une valeur du paramètre de Birks de $(0,010 \pm 0,002)\text{cm.MeV}^{-1}$, ce qui induit une incertitude standard relative de 0,48 %. En considérant le spectre avec effet d'échange, tout autre paramètre restant inchangé, le rendement de détection est de $(0,7913 \pm 0,0039)$.

Quand l'effet d'échange n'est pas pris en compte, le biais relatif sur l'activité mesurée est de 0,5 %, valeur qui n'est pas négligeable devant l'incertitude.

6.1 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Ce travail de thèse a répondu à mon désir d'une étude complète, qui pour moi est : à partir d'une problématique théorique, mettre en oeuvre les moyens expérimentaux pour y répondre.

En effet, l'objectif était de répondre à un besoin de données expérimentales en spectrométrie β nécessaires à la validation de la théorie. Nous avons choisi d'utiliser les calorimètres métalliques magnétiques, qui avaient montré de très bon résultats en spectrométrie X ou γ , pour répondre à cette problématique. Démontrer le potentiel d'une spectrométrie β avec ce type de détecteur nécessitait un développement d'une méthode de détection et d'un traitement des données répondant aux exigences de la spectrométrie β mais aussi un travail de radiochimie quant aux sources utilisables. L'importance de ce dernier point s'est d'ailleurs révélée en cours d'étude. Ayant répondu aux objectifs fixés pour un émetteur donné, nous avons pu observer directement l'effet de la validation de la théorie dans le domaine de la métrologie.

La réponse linéaire en fonction de l'énergie, le seuil de détection très bas (200 eV) et le rendement de 100% obtenus avec les calorimètres métalliques magnétiques cryogéniques ont permis, pour la première fois, d'observer expérimentalement l'effet d'échange à des énergies aussi basses. Cette observation expérimentale valide les programmes de calcul de spectres bêta, incluant le calcul de cet effet d'échange, développés au sein du LNHB.

Dans la perspective d'une mesure métrologique en routine, cette première étude montre d'excellents résultats. Il faut néanmoins poursuivre le développement de la détection et aussi approfondir la partie chimique de la préparation des sources.

En effet, pour les énergies mises en jeu dans cette étude, le rayonnement de freinage a pu être négligé. Pour des gammes d'énergies plus élevées, une adaptation du montage de détection sera probablement à prévoir. De plus, des tests complémentaires sont à prévoir pour comprendre l'échec de l'utilisation des méandres. L'adaptabilité inhérente des méandres serait un plus pour les mesures à haute énergie. En ce qui concerne la radiochimie, bien qu'elle n'ait pas été traitée de manière approfondie dans cette thèse, les observations ont montré l'importance de

la qualité des sources, qui bien sûr, dépend du radionucléide mesuré. Une étude chimique préalable à chaque mesure semble indispensable. De plus, pour mieux conclure ce travail de thèse, il serait intéressant de mettre en évidence les phénomènes qui pourraient intervenir dans un sel expliquant nos observations sur les spectres β . Une piste intéressante pour s'affranchir des problèmes de préparation adéquate de la source en fonction du radionucléide pourrait être l'implantation ionique.

Première partie

APPENDIX

.1 TRAITEMENT DES DONNÉES

Cette annexe est un supplément à la partie de traitement des données développée dans le corps du manuscrit (§4.2). Le filtrage utilisé et quelques détails sur les programmes de traitement des données, dont une comparaison entre deux types de traitements, sont exposés.

.1.1 Filtrage

La donnée importante pour la détermination du spectre en énergie est l'amplitude des impulsions. Nous voulons donc un filtre dont le gain est le plus constant possible dans sa bande passante. Parmi les trois filtres analogiques habituels (Butterworth, Bessel et Chebyshev), le filtre Butterworth répond très bien à ce critère (fig.47).

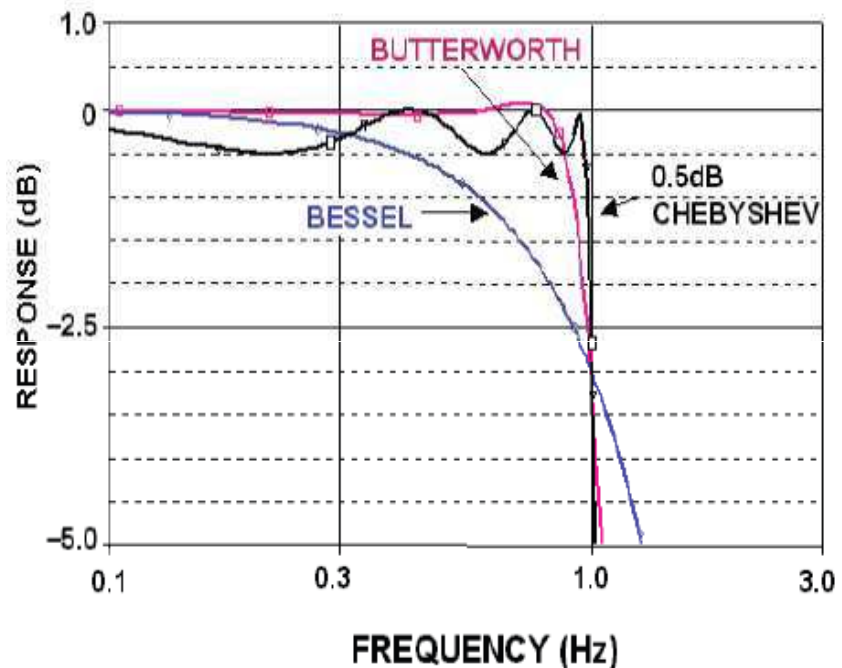


FIGURE 47: Comparaison qualitative de la réponse en gain des filtres Butterworth, Bessel et Chebyshev.

Dans la mesure où la forme des impulsions est homogène pour toutes les énergies, nous avons utilisé un filtre passe-bande dont les fréquences de coupure sont choisies en fonction des temps caractéristiques des impulsions.

Le premier paramètre à déterminer concernant l'utilisation du filtre est son ordre. L'ordre d'un filtre définit l'efficacité avec laquelle on supprime les fréquences par rapport à la fréquence de coupure : plus l'ordre du filtre est élevé plus son efficacité est élevée. Nous avons donc comparé l'influence de l'ordre du filtre sur nos signaux (fig.48).

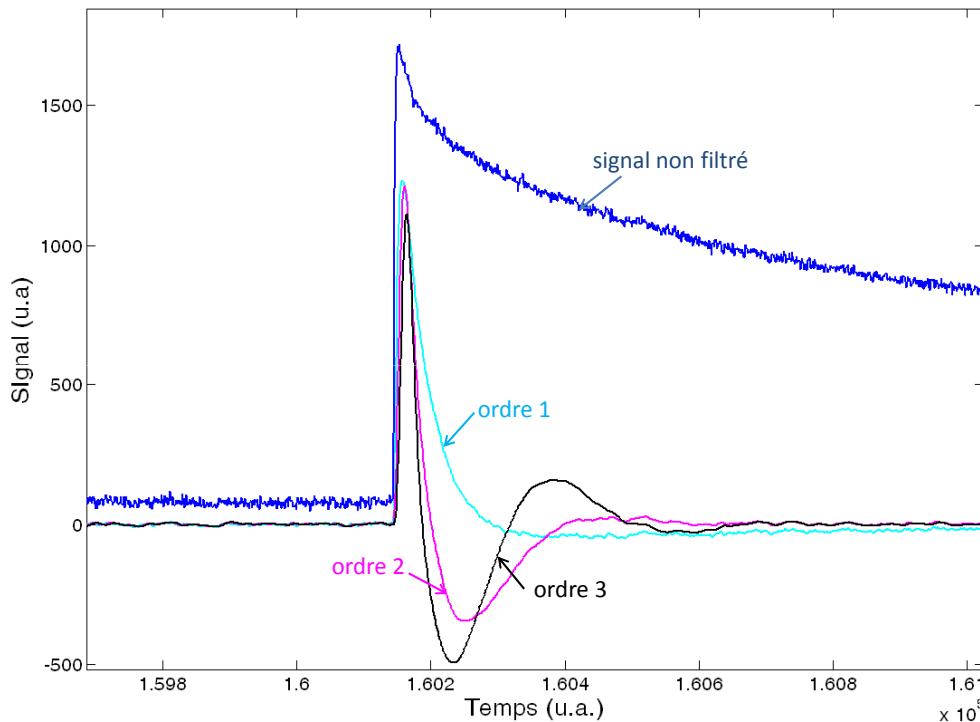


FIGURE 48: Pour une même bande passante, comparaison de l'influence de l'ordre du filtre Butterworth passe-bande sur la forme des impulsions.

De manière empirique, nous montrons (fig.48) que pour nos signaux, l'ordre 1 est à privilégier. En effet, en augmentant l'ordre du filtre, nous observons un undershoot : la remise à zéro du signal est plus lente ce qui augmente le temps mort et diminue ainsi le taux de comptage.

Le deuxième paramètre important dans l'utilisation d'un filtre est la fréquence de coupure.

Nous utilisons un filtre passe-bande dont les fréquences de coupure dépendent des temps caractéristiques des impulsions, c'est-à-dire de la mesure. Les fréquences de coupure sont donc des paramètres à entrer en fonction de la mesure. Dans une impulsion, deux temps caractéristiques apparaissent. Le temps de montée est lié au délai de diffusion de la chaleur entre l'absorbeur et le senseur ; ce délai dépend donc des volumes de l'absorbeur

et du capteur utilisés. La mauvaise qualité du contact thermique entre les deux feuilles de l'absorbeur ou entre l'absorbeur et le capteur peut éventuellement augmenter le temps de montée du signal. Le temps de descente de l'impulsion représentant le temps de remise à l'équilibre du détecteur, dépend de la conductance du lien thermique (matériaux, section, longueur...).

Pour les mesures du ^{63}Ni effectuées, les absorbeurs, capteurs et liens thermiques sont approximativement de la même taille donc, d'une mesure à l'autre, les impulsions sont de la même forme : les fréquences de coupure sont les mêmes dans tous les traitements.

Le traitement des données se faisant sous Matlab, nous utilisons la fonction Butterworth disponible dans la bibliothèque de fonctions Matlab. De manière empirique, nous déterminons les fréquences de coupure adaptées à nos signaux (fig.49 et 50).

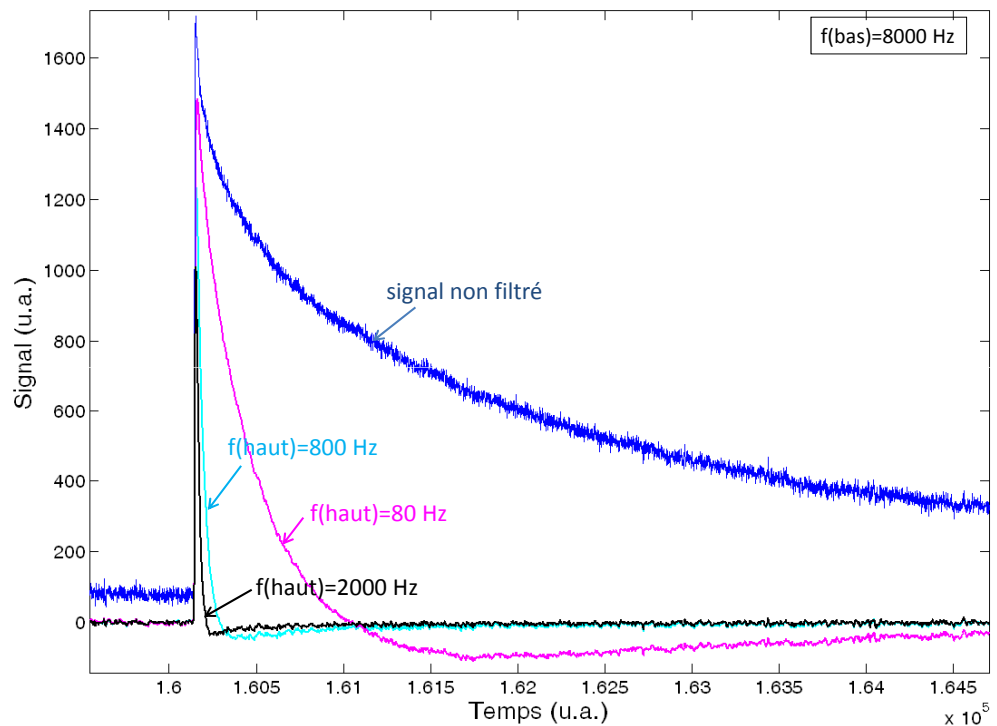


FIGURE 49: Comparaison de l'influence des valeurs de la fréquence de coupure haute sur les signaux filtrés

Un compromis est à trouver entre l'efficacité du filtre et la diminution de l'amplitude du signal due au filtre. Dans le cas du filtre moyenneur (filtre passe-bas), une fréquence de coupure trop basse équivalait à un lissage de la ligne de base nuisait à la

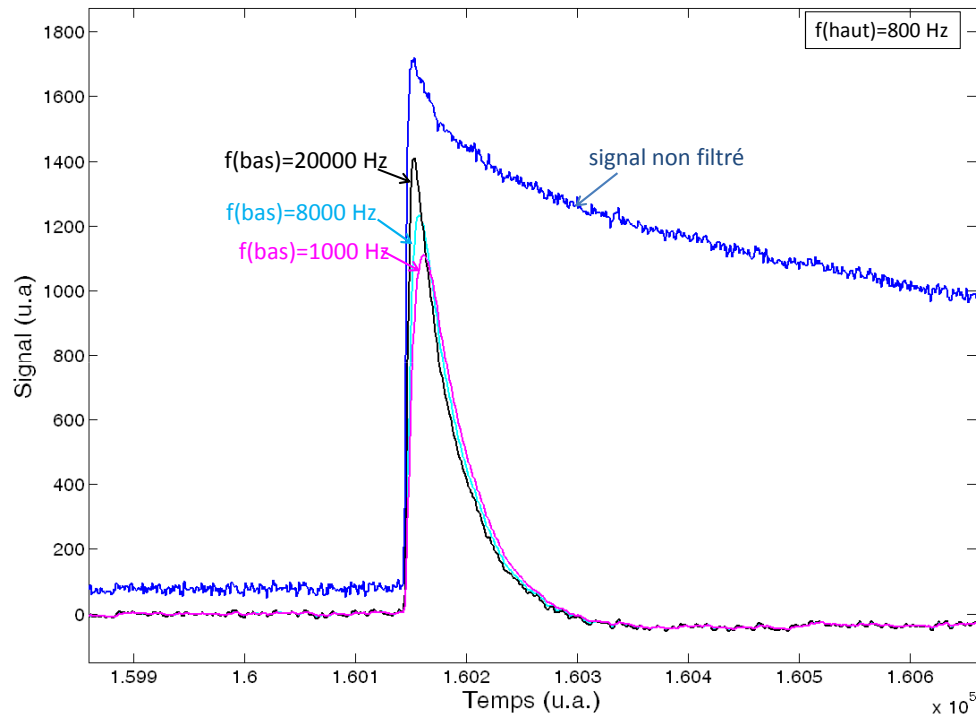


FIGURE 50: Comparaison de l'influence des valeurs de la fréquence de coupure basse sur les signaux filtrés

visibilité et donc à la correction de la dérive de température par exemple (fig.50).

La valeur de la fréquence de coupure basse pour le filtre passe-haut est critique dans la mesure où l'utilisation d'un passe-haut fait apparaître un undershoot, semblable à celui apparaissant pour un filtre d'ordre supérieur à 1 (fig.49). L'enjeu est de réussir à le minimiser le plus possible -dans l'optique d'optimiser le taux de comptage- tout en conservant l'amplitude d'impulsion la plus grande possible.

La bande passante choisie pour toutes les mesures est [800; 8000] Hz.

.1.2 Fonctionnalité du programme utilisé et confrontation avec un autre type de traitement

En pratique, lors d'un traitement de données, plusieurs étapes et plusieurs programmes se succèdent.

Le programme principal inclut la partie lecture du signal jusqu'à la détermination d'un premier spectre non corrigé. C'est-à-dire qu'il inclut le filtrage du signal, la détection des impulsions,

la détermination des amplitudes et la sélection de celles utilisées pour la construction du spectre. Cette sélection est basée sur un certain nombre de critères empiriques mentionnés dans le paragraphe 4.2.1. Ce traitement dure quelques heures pour quelques dizaines de Go de données enregistrées en continu. A la fin de ce programme, pour chaque impulsion sélectionnée, sont stockés dans un fichier texte :

- le numéro du fichier
- le numéro de l'acquisition
- les coordonnées de début et de fin de l'impulsion
- la valeur et la position du maximum de l'impulsion
- la valeur moyenne de la ligne de base précédant l'impulsion
- l'amplitude de l'impulsion non filtrée et la valeur de la ligne de base non filtrée.

Dans un fichier de données Matlab, les paramètres et les données précédentes sont aussi sauvegardés dans l'attente de l'établissement du spectre en énergie.

Dans ce programme principal, outre les fonctions de la bibliothèque Matlab, des fonctions développées par Sébastien KOWALSKI¹ sont utilisées également (lecture de fichier, détection des impulsions, évaluation du temps de montée).

Deux autres programmes annexes sont utilisés par la suite ; d'abord, pour corriger d'une éventuelle dérive en température (§4.2.3) et ensuite pour étalonner le spectre en énergie et déterminer la résolution en énergie sur la raie d'étalonnage.

Cette méthode de traitement de données, incluant le programme principal et les programmes annexes, a été confrontée à un autre type d'analyse, basée sur l'utilisation d'une ligne à retard et un ajustement gaussien pour déterminer l'amplitude (fig.51). Cette méthode de traitement utilisant une ligne à retard est celle qui a été utilisée pour l'établissement du spectre du ^{241}Pu lors des études préliminaires à la proposition de thèse [LRC⁺10].

Les spectres de ^{241}Pu obtenus avec les deux analyses sont consistants entre eux. Le traitement à partir d'un filtrage passe-bande a été choisi dans le cadre de l'étude du ^{63}Ni en raison de sa rapidité par rapport au filtrage utilisant une ligne à retard.

1. travail effectué lors d'un stage de M2 dans le cadre de ses études à l'École Nationale Supérieure Électronique, Informatique Radiocommunication Bordeaux (ENSEIRB)

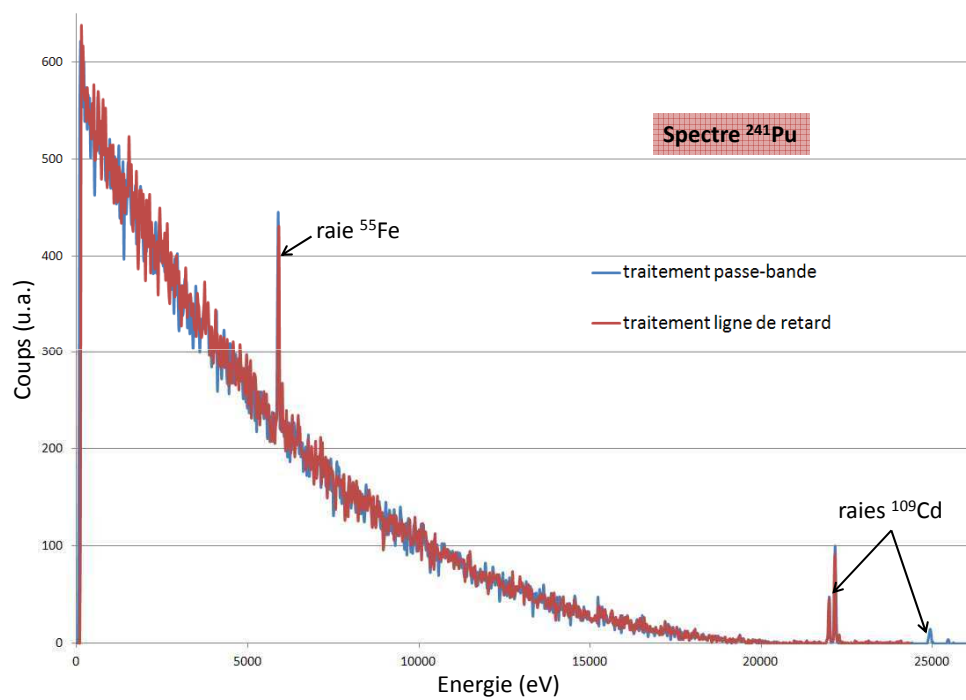


FIGURE 51: Comparaison de deux traitements différents d'une même mesure du spectre du ^{241}Pu : traitement basé sur l'utilisation d'une ligne de retard et traitement via un filtrage passe-bande (utilisé pour l'étude du ^{63}Ni).

.2 LE DISPOSITIF DE MESURE DÉVELOPPÉ POUR LA SPECTROMÉTRIE β

Un montage dédié à la spectrométrie β avec la lecture du signal à partir d'une bobine de lecture en forme de méandre a été pensé, dessiné et réalisé pendant la thèse. En effet, le cahier des charges pour un montage de spectrométrie β diffère de celui pour la spectrométrie X. Nous avons donc profité de ces exigences différentes pour réaliser un montage plus robuste et plus adaptable à une mesure en routine pour la spectrométrie β .

.2.1 *Des exigences différentes pour la spectrométrie β par rapport à la spectrométrie X*

Les méandres avaient, jusqu'à présent, été utilisés pour la spectrométrie X. Pour ce type de mesure, la source est extérieure et l'angle solide (collimation et distance source / détecteur) est tel que le taux de comptage est de l'ordre de 10 cps.s^{-1} .

Pour la spectrométrie β , la source extérieure sert à l'étalonnage en énergie, le taux de comptage souhaité est donc largement en deçà de celui de la spectrométrie X : inférieur à 1 cps.s^{-1} . Le système de collimation et d'alignement de la source extérieure par rapport au détecteur ne répond donc pas aux mêmes problématiques que le montage utilisé pour la spectrométrie X.

Le processus de sandwich de la source β entre deux feuilles d'or, pour obtenir un angle de détection de $4\pi \text{ sr}$, est irréversible. Ainsi, à mesure différente, absorbeur différent. Dans le montage utilisant les méandres, le couplage absorbeur-senseur se fait via un collage. Le senseur étant pulvérisé sur les pistes de niobium du méandre, les méandres deviennent des consommables : à mesure différente, méandre différent. Dans l'optique de mesures en routine, il faut pouvoir changer la source (et donc le méandre) facilement, sans délai et sans modifier le reste du dispositif (entre autres, la collimation et l'alignement de la source extérieure).

Au cours de la thèse, la configuration des méandres fabriqués par l'université de Heidelberg a changé. En effet, ils sont passés d'un méandre en forme de carré à un méandre en forme d'octogone mais surtout d'une puce de 3 mm de côté à une puce de 5 mm de côté avec les emplacements pour les connexions électriques différents (fig.52 et annexe ??). Ayant à notre disposition des méandres des deux types de configuration, il faut un dispositif adapté aux deux puces.

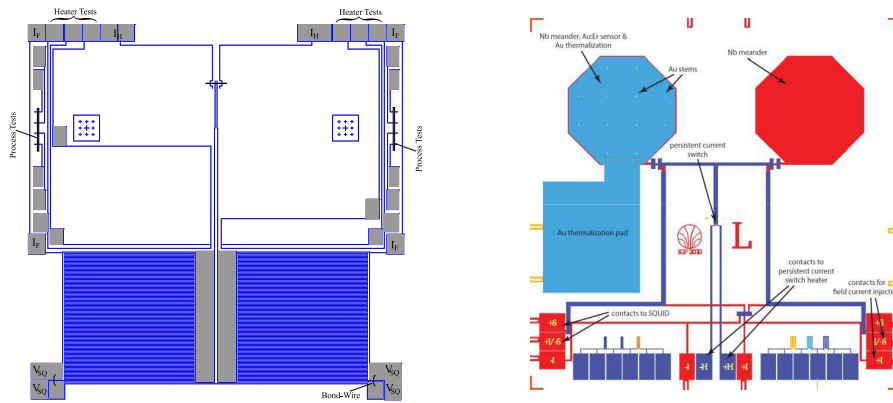


FIGURE 52: A gauche, les méandres de l'ancienne génération (SQ, les contacts pour le SQUID, I_F , les contacts pour l'injection du courant dans le circuit, I_H , les contacts pour le switch thermique). A droite, les méandres de la nouvelle génération.

.2.2 Le premier montage utilisé

Les premières tentatives de mesure de spectres β avec les méandres ont été faites à partir d'un montage dérivé de celui utilisé pour la spectrométrie X. Ce montage nécessite une bonne dextérité au niveau des soudures pour éviter les contacts de masse (fig.53, photo en haut à gauche) et il est très fragile puisque les câbles à la sortie du détecteur ne sont pas fixés (fig.53). Lors des déplacements et du câblage dans le cryostat, un soin particulier doit être pris pour n'exercer aucune force sur ces fils au risque d'arracher les soudures ou décoller les pistes de cuivre. Méandre et SQUID étant collés sur la même platine (fig.53, photo en haut à gauche), l'acétone pour décoller l'un ou l'autre doit être utilisé avec minutie pour éviter de décoller la mauvaise puce.

Outre ces problèmes de dextérité pour un doctorant de première année qui se résolvent avec la pratique au cours de la thèse, un problème persiste : la configuration géométrique de la source externe. En effet dans ce montage, le collimateur est à une distance fixe du détecteur (fig.53, photo du bas) . De même, un réglage fin de la position de la source externe par rapport au collimateur est difficile. Cela s'explique par le taux de comptage relativement élevé demandé en spectrométrie X (la source à mesurer est externe).

Nous avons donc construit de nouvelles pièces pour un nouveau dispositif de mesure spécifique à la spectrométrie β où les différents étages sont indépendants les uns des autres.

.2.3 Le dispositif de mesure dédié à la spectrométrie β

Pour rendre le montage plus pratique en routine et éviter les problèmes de décollement, on découple méandre et SQUID en leur associant à chacun un support spécifique. Ces platines en laiton (fig.54) sont par la suite vissées au support principal du dispositif. Ainsi, à chaque mesure, il suffira de dévisser la platine du méandre et de la remplacer par une autre platine où sera collé le nouveau méandre. On pourra de la même manière aisément changer de SQUID sans risquer de l'abîmer en dévissant la platine associée. Bien entendu, les connections électriques devront être refaites à chaque fois qu'une des puces sera remplacées.

Remarque : Les cotes apparaissant sur les plans sont les dimensions réelles exprimées en mm.

Le support principal du détecteur (fig.57) est un parallélépipède de 3 cm de haut. Cette hauteur est nécessaire pour assurer une atténuation optimale des éventuels champs magnétiques parasites au niveau de la boucle du SQUID. Pour cela, comme expliqué au paragraphe 4.1.3, on utilise un capot en plomb qui entourera tout le dispositif (fig.55). La pièce utilisée comme support principal est creuse pour permettre sa bonne thermalisation (fig.57).

Pour éviter toute interaction parasite des rayonnements -de la source d'étalonnage essentiellement- avec le support, la pièce du support est creusée sur toute la profondeur au niveau de l'emplacement des absorbeurs. Seule la vis du support méandre assure le contact mécanique et thermique, il n'y a rien en dessous du reste de la platine du méandre (fig.57).

Deux autres étages sont à rajouter au dessus de ce support, l'étage de la source externe d'étalonnage et celui de collimation associée. Le point critique est le réglage fin du positionnement horizontal et vertical pour définir un angle solide précis.

Le support-collimateur est constitué de quatre pièces (fig.56). La figure 55 montre l'assemblage final des pièces les unes par rapport aux autres.

Dans les trous désignés par des flèches rouges (fig.56), passent des vis qui exercent une action mécanique sur la pièce 3. Ces 4 vis permettent de régler finement le positionnement horizontal de la pièce 3 sur laquelle est posé le collimateur. Lorsque l'alignement horizontal du collimateur est effectué, on fixe cette position via 4 vis désignées en bleu (fig.56). Ces vis assurent également une bonne thermalisation du collimateur -généralement en plomb- entre les pièces 2 et 3.

Via la pièce 1bis, la pièce 1 glisse sur deux colonnes ce qui permet de fixer une première position verticale grossière des étages les uns par rapport aux autres. Le réglage plus fin de la distance se fait grâce aux vis désignées en vert : on fixe la position de la pièce 3 par rapport à celle de la pièce 1.

Les colonnes sont à leur tour fixées à une platine de base (fig.55). Ainsi, en dévissant ces colonnes, nous avons accès au support principal du détecteur (pour changer les platines de méandre et SQUID éventuellement) sans modifier l'alignement horizontal ou vertical des étages de collimation et source d'étalonnage.

Pour l'étage de la source d'étalonnage les mêmes pièces sont utilisées permettant également le positionnement horizontal et vertical de la source d'étalonnage.

Bien qu'opérationnel, aucune donnée expérimentale n'a été obtenue à partir de ce montage étant donné les problèmes rencontrés avec les méandres énoncés dans la partie 4.1.1. L'utilisation de ce montage est cependant prévue pour les mesures en spectrométrie β notamment pour des émetteurs à énergie maximale plus élevée ainsi que pour la mesure d'activité.

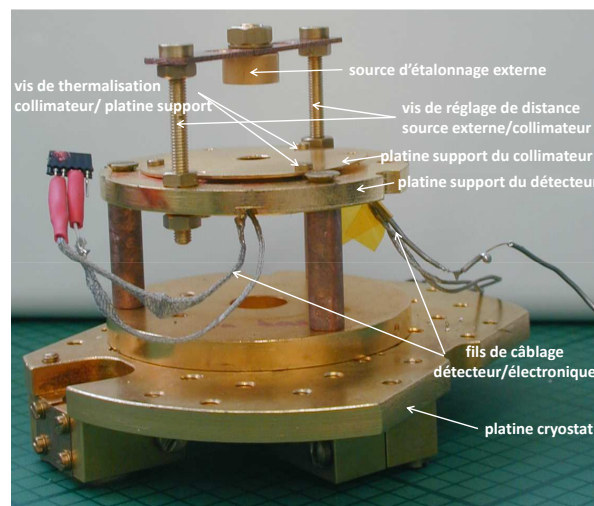
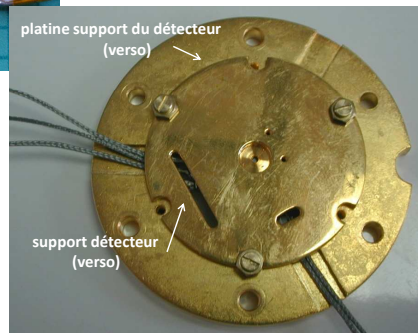
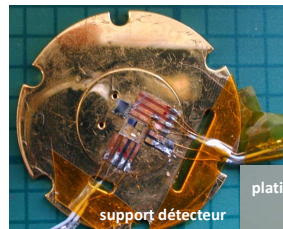
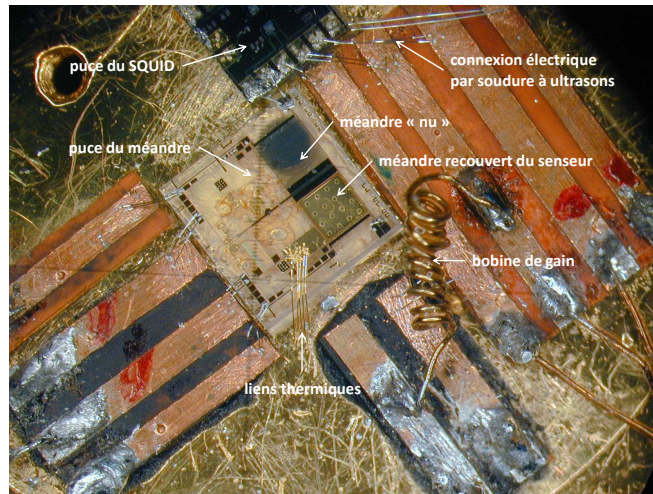


FIGURE 53: En haut, à gauche, photographie de la disposition de la puce du SQUID et de celle du méandre ainsi que les différentes connexions. En haut, à droite, la fixation du support détecteur sur la platine support détecteur qui sera incluse au montage final. En bas, montage final du dispositif de mesure : étage détecteur, étage collimation et étage source d'étalonnage.

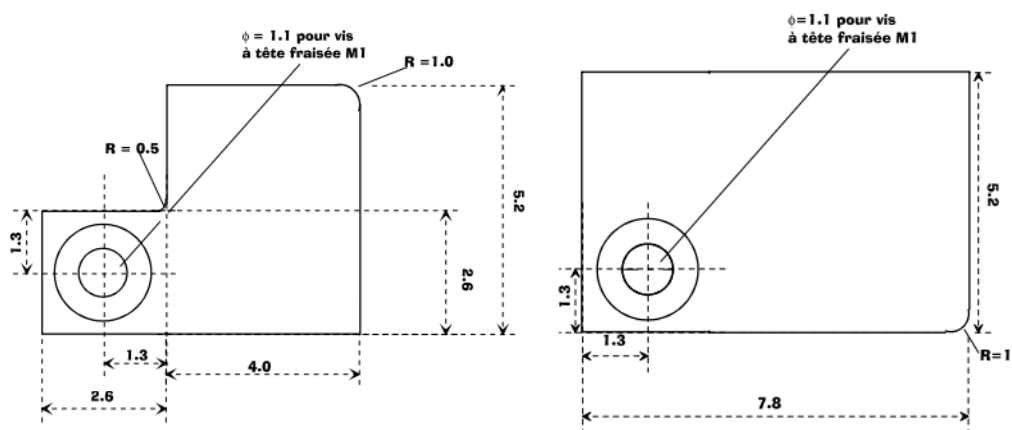


FIGURE 54: A gauche, plan du support du SQUID ; à droite, celui du support du méandre. Platines de 1 mm d'épaisseur en laiton.

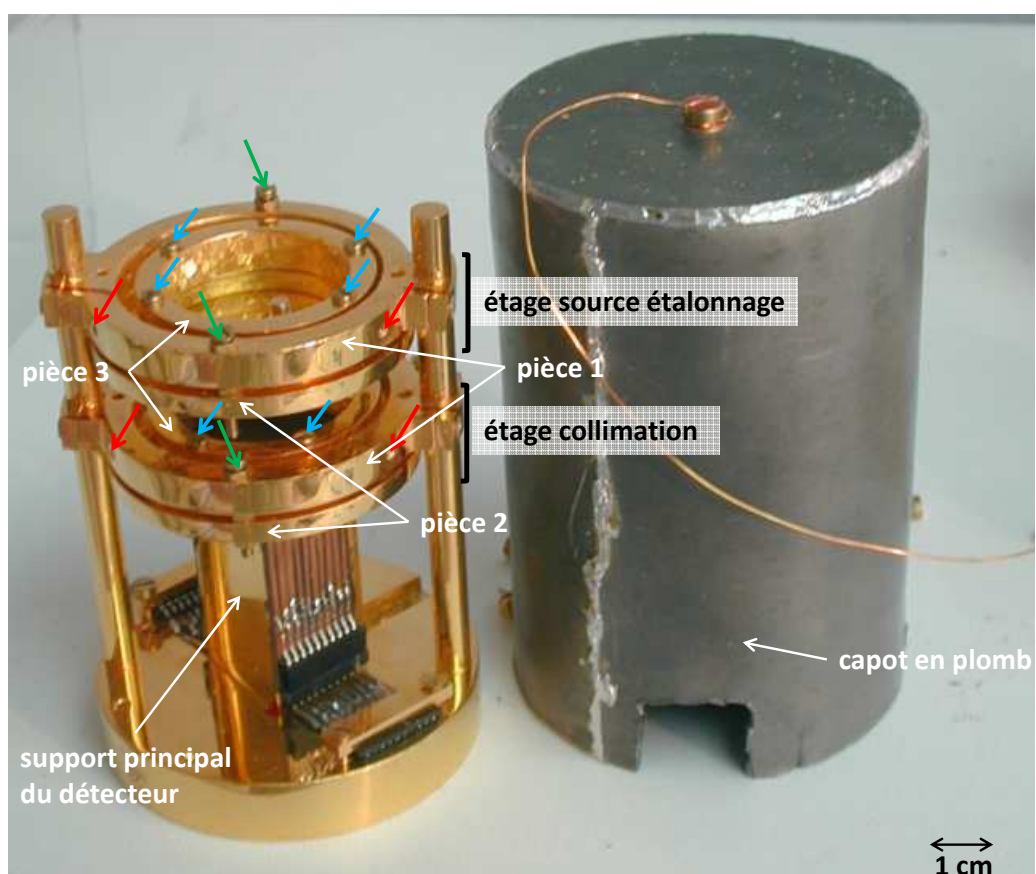
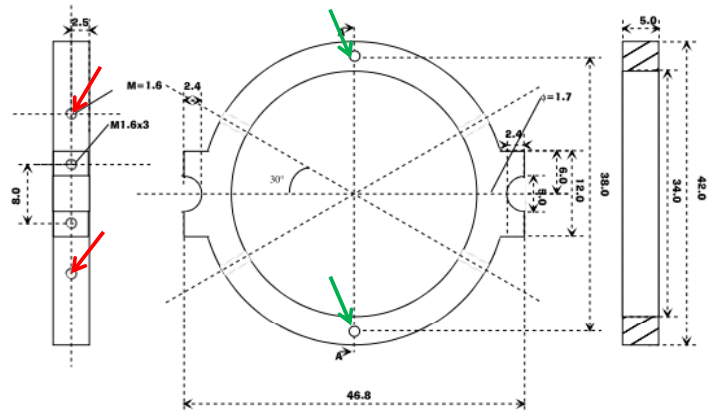
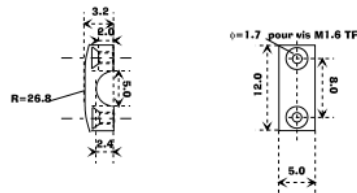


FIGURE 55: Photo du dispositif dans son ensemble

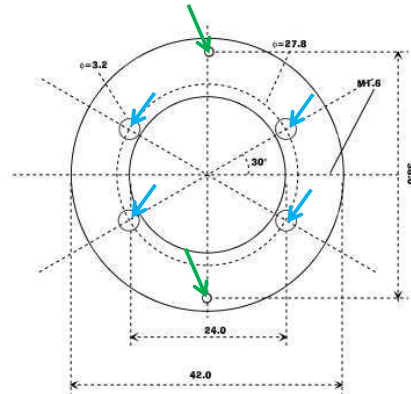
Support collimateur
Pièce 1
échelle 2:1
cuivre doré
4 exemplaires



Support collimateur
Pièce 1-bis
échelle 2:1
cuivre
8 exemplaires



Support collimateur
Pièce 2
échelle 2:1
cuivre doré
4 exemplaires
épaisseur 3.0 mm



Support collimateur(alignement horizontal)
Pièce 3
échelle 2:1
cuivre
4 exemplaires
épaisseur: 6 mm

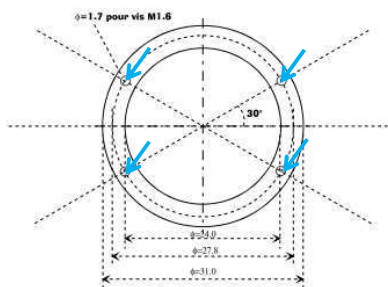


FIGURE 56: Les différentes pièces constituant le support collimateur.

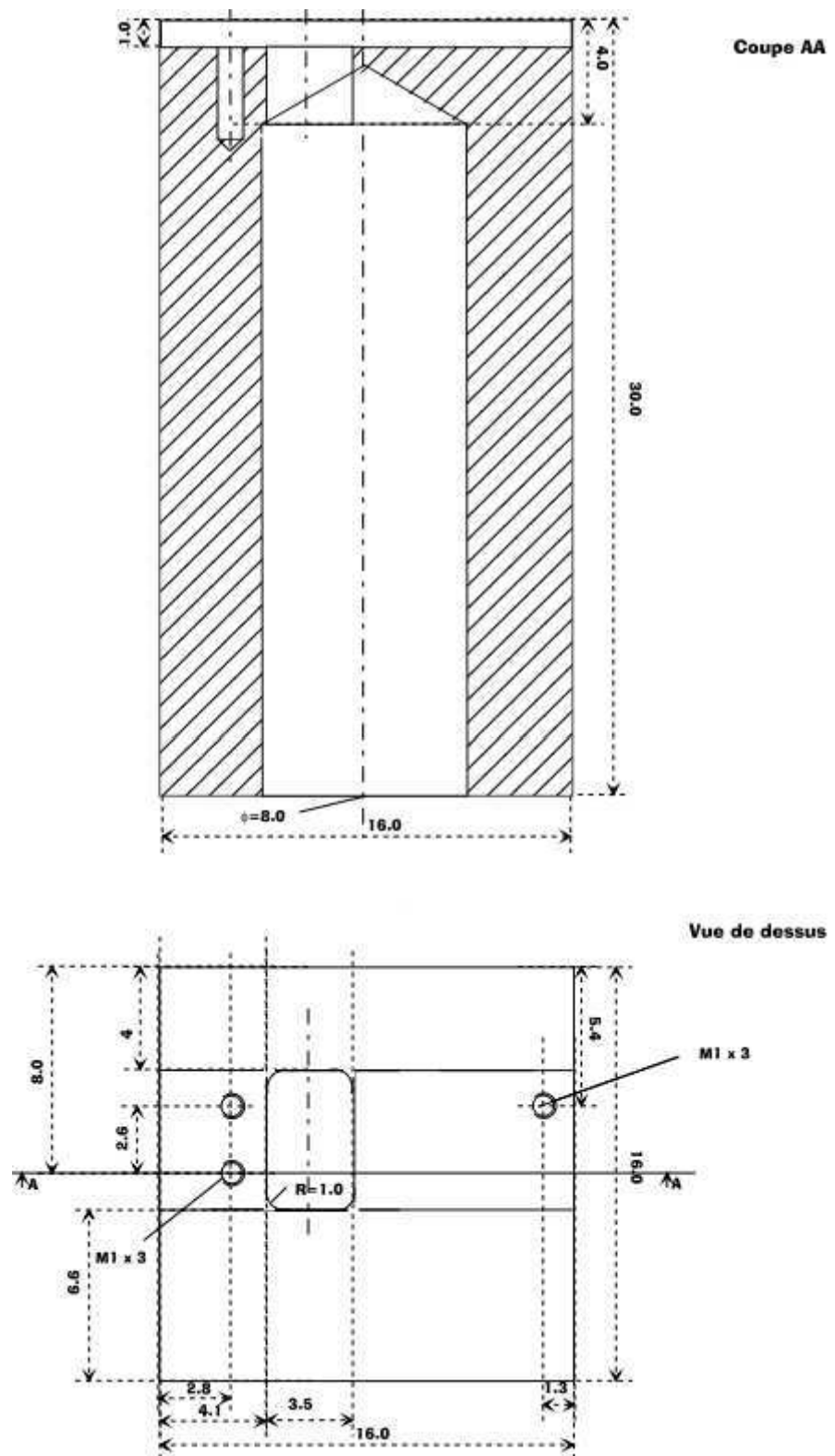


FIGURE 57: Support principal du détecteur en laiton.

.3 CARACTÉRISATION D'UN MÉANDRE

Remarque : Cette annexe est un extrait d'un article faisant suite à une présentation orale aux Rencontres Jeunes Chercheurs, organisées conjointement par la Société Française de Physique et la Société Française de Médecine Nucléaire en décembre 2010.

L'article présente le processus expérimental pour la caractérisation d'un méandre et les résultats pour un méandre donné.

" ...

Dans un premier temps, il est nécessaire de caractériser notre chaîne de détection.

Pour cela, nous avons fait une acquisition sans absorbeur, uniquement avec une source extérieure de ^{55}Fe (2 raies principales d'énergie 5,9 keV et 6,5 keV) pour vérifier les performances du détecteur.

Le capteur pulvérisé sur la bobine de lecture a une épaisseur de 3,3 μm . La configuration géométrique et le collimateur à utiliser sont déterminés via un calcul d'angle solide et une simulation Monte Carlo.

On mesure la sensibilité du capteur, c'est-à-dire la variation d'aimantation, pour différents courants de polarisation en fonction de la température. Puis, on quantifie la réponse du capteur, en Φ_0/keV , soumis à un rayonnement X et on évalue la résolution en énergie de cette chaîne de mesure.

Deux courants différents ont été injectés dans la boucle supraconductrice, 30 mA et 100 mA (fig.58). On fait varier la température du détecteur par régulation PID et on mesure l'aimantation du capteur.

On compare les données mesurées aux données calculées via un programme Matlab développé dans une thèse précédente[Rodo7].

La forme des courbes obtenues correspond bien à celle attendue : une augmentation de la sensibilité du capteur en fonction du courant de polarisation et une dépendance à la température plus importante pour des gammes de températures élevées, supérieures à 50 mK.

Néanmoins la comparaison avec les données calculées indique des valeurs trois fois plus faibles qu'attendues. En effet, les valeurs obtenues se superposent aux courbes calculées pour des courants de polarisation de 12 et 40 mA.

Deux explications sont alors proposées :

- un court-circuit dans le circuit en amont de la bobine de lecture, de sorte que seule une partie du courant injecté parcourt effectivement le méandre,

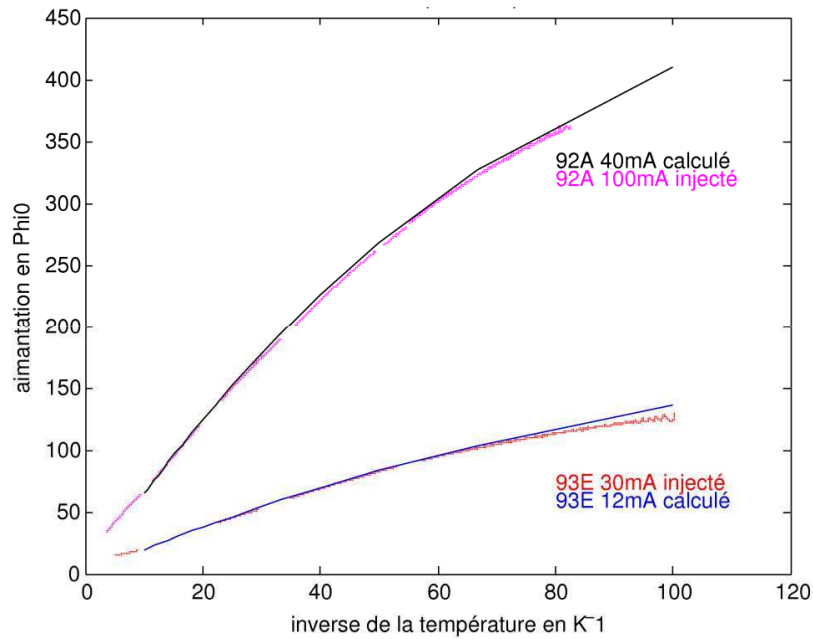


FIGURE 58: Aimantation du senseur en fonction de l'inverse de la température pour deux courants de polarisation différents (30 mA et 100 mA) et comparaison avec courbes calculées. "92A" correspond au numéro de l'acquisition.

- un court-circuit au niveau de la bobine en forme de méandre qui implique la polarisation de seulement un tiers du senseur.

La mesure de l'amplitude des impulsions en fonction de la température (fig.59) semble confirmer la deuxième hypothèse.

En effet, si en injectant un courant de 100 mA dans le circuit, un courant de 40 mA parcourt le méandre alors les amplitudes des impulsions mesurées doivent correspondre à celles calculées avec un courant injecté égal au courant parcourant le méandre, c'est-à-dire 40 mA.

Par contre, si le courant parcourt uniquement une partie de la bobine en forme de méandre, son inductance proportionnelle à sa surface utile diminue. Le couplage senseur/SQUID dépendant de l'inverse de l'inductance de la bobine de lecture, il est plus faible ce qui entraîne une diminution du signal à l'entrée du SQUID.

Les courbes non superposées sont donc cohérentes avec l'hypothèse de court-circuit dans le méandre.

La sensibilité moindre du senseur et la transmission du signal moins efficace ont une incidence sur les performances des mesures, telle qu'une résolution en énergie insuffisante. En effet, on

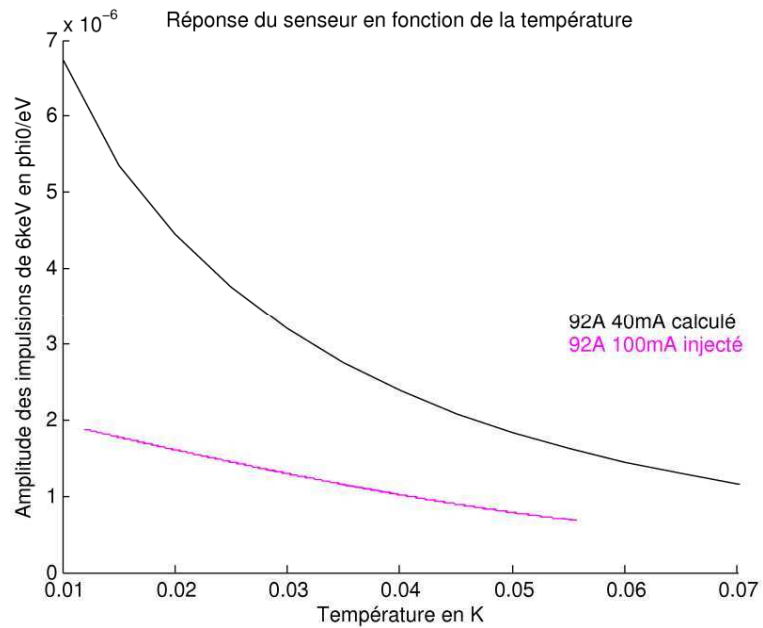


FIGURE 59: Mesure de l'amplitude des impulsions de 6 keV interagissant dans l'absorbeur en fonction de la température. Comparaison avec le calcul.

a pu observer que les deux raies du ^{55}Fe , à 5,9 et 6,5 keV, ne sont pas différenciées.

Ce méandre ne pourra vraisemblablement pas être utilisé par la suite.

..."

Le méandre ayant fait l'objet de cette caractérisation, issu de la première génération (voir §.2.1) n'a donc pas été utilisé pour des mesures. Pour les autres tentatives de mesure avec les méandres qui ont suivies et qui se sont révélées infructueuses, les données de caractérisation n'ont pas été traitées.

BIBLIOGRAPHIE

- [ABGS98] L. C. Angrave, N. E. Booth, R. J. Gaitskell, and G. L. Salmon. *Phys. Rev. Lett.*, 80(1610), 1998.
- [AM76] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Physique des solides*. 1976.
- [Angoo] L. C. Angrave. *The physics of non-equilibrium phonons and non-equilibrium superconductivity applied to a precision measurement of the beta spectrum of ^{63}Ni* . PhD thesis, Madgalen College, Oxford, 2000.
- [AR63] P. W. Anderson and J. M. Rowell. *Phys. Rev. Lett.*, 10(230 – 232), 1963.
- [AWTo3] G. Audi, A.H. Wapstrab, and C. Thibault. *Nucl. Phys. A*, 729(337–676), 2003.
- [BB82] H. Behrens and W. Bühring. Electron radial wave functions and nuclear beta-decay. *Oxford Science Publications*, 1982.
- [BCKo7] R. Broda, P. Cassette, and K. Kossert. *Metrologia*, 44(S36-S52), 2007.
- [BCS57] Bardeen, Cooper, and Schrieffer. *Phys. Rev.*, 108(1175), 1957.
- [Bea86] T. M. Beasley. *J. Environ. Radioactivity*, 4(1-10), 1986.
- [BEL⁺93] S. R. Bandler, C. Enss, R.E. Lanou, H. J. Maris, T. More, F.S. Porter, and G. M. Seidel. *J. Low Temp. Phys.*, 93(709), 1993.
- [Bel07] M. Le Bellac. *Physique Quantique*. Number 325-328. 2007.
- [Bet76] D. S. Betts. *Refrigeration and thermometry below 1 K*. 1976.
- [Bet89] D. S. Betts. *An introduction to Millikelvin Technology*. 1989.
- [Bha64] C. P. Bhalla. *Nat. Bur. Std. (U.S)*, Monograph 81(Chaps. 2, 3, 7), 1964.
- [BR62] C. P. Bhalla and M. E. Rose. *Phys. Rev.*, 128(774), 1962.
- [BS76] H. Behrens and L. Szybisz. *Physics Data*, ZAED(6.1), 1976.

- [BU88] M. Bühler and E. Umlauf. *Europhys. Lett.*, 5(297), 1988.
- [BZo4] G.C. Hilton D.P. Pappas J.N. Ullom M.E. Huber B.L. Zink, K.D. Irwin. *Nucl. Instrum. Methods A*, 520(52 – 55), 2004.
- [CB04] J. Clarke and A. I. Braginski. *The SQUID Handbook, Volume 1 : Fundamentals and Technology of SQUIDs and SQUID Systems*. 2004.
- [CMB75] CMBEEP. *Division of Medical Sciences, National Research Council, National Academy of Sciences, Washington D.C.*, (pp38 – 39), 1975.
- [Day03] P. K. Day. *Nature*, 425(817 – 821), 2003.
- [Deg92] J. Degauque. *Journal de Physique IV*, 2(C3 – 1 - C3 – 13), 1992.
- [dTdLoo] E. du Trémolet de Lacheisserie. *Magnétisme : Fondements*. 2000.
- [EHa] C. Enss and S. Hunklinger. *Low-temperature physics*. Number 167-203.
- [EHb] C. Enss and S. Hunklinger. *Low-temperature physics*. Number 205 – 244.
- [EL] B. Escoubès and J. L. Lopes. *Sources et évolution de la physique quantique. Textes fondateurs*.
- [EMo8] C. Enss and D. McCammon. *J Low Temp Phys*, 151(5 – 24), 2008.
- [Fer34] E. Fermi. *Z. Physics*, 88(161), 1934.
- [Fer50] E. Fermi. *Nuclear Physics : A Course Given by Enrico Fermi at the University of Chicago*. 1950.
- [FES05] A. Fleischmann, C. Enns, and G.M Seidel. *Cryogenic Particle Detection, ed. by C. Enss Topics in Applied Physics*, volume 99. 2005.
- [FFG⁺90] M. Frank, P. Freund, J. Gebauer, K. Pretzl, A. Singsaas, and L. Stodolsky. *Nucl. Instrum. Methods A*, 287(583 – 594), 1990.
- [FMU93] T. Faush, M.Bühler, and E. Umlauf. *J. Low Temp. Phys.*, 93(703), 1993.
- [Gal91] J.C Gallop. *SQUIDs, the Josephson Effects and Superconducting electronics*. 1991.

- [GFG⁺99] F. Gatti, F. Fontanelli, M. Galeazzi, A. M. Swift, and S. Vitale. *Nature*, 397(137 – 139), 1999.
- [GM71] N. B. Gove and M. J. Martin. *Nucl. Data Tables*, 10(205 – 317), 1971.
- [Goo54] R. H. Good. *Phys. Rev.*, 94(931 – 933), 1954.
- [GPo6] J. Gallop and F. Piquemal. *Revue Française de Métrologie*, 4(8), 2006.
- [HKP⁺99] E. Holzschuh, W. Kündig, L. Palermo, H. Stüssi, and P. Wenk. *Phys. Lett. B*, 451(247 – 255), 1999.
- [HP92] M.R Harston and N.C Pyper. *Phys. Rev. A*, 45(9), 1992.
- [HR25] A. L. Hughes and V. Rojansky. *Phys. Rev.*, 34(284), 1925.
- [IH05] K.D Irwin and G.C Hilton. *Cryogenic Particle Detection*, ed. by C. Enss *Topics in Applied Physics*, volume 99. 2005.
- [Irwo7] K. Irwin. *Pour la science*, 354, 2007.
- [Jau72] W. Jaus. *Phys. Lett. 40*, 40(616-620), 1972.
- [Jos62] B. D. Josephson. 1(251 – 253), 1962.
- [KDCo7] R. H. Koch, D. P. DiVincenzo, and J. Clarke. *Phys. Rev. Lett.*, 98(267), 2007.
- [KdHo4] Z.I Kolar and W. den Hollander. *App. Rad. Iso.*, 61(261-266), 2004.
- [Koo91] S.E. Koonin. *Nature*, 354(468-469), 1991.
- [KRP36] F. N. D. Kurie, J. R. Richardson, and H. C. Paxton. *Phys. Rev.*, 49(368), 1936.
- [Lou74] O. V. Lounasmaa. *Experimental Principles and Methods below 1 K*. 1974.
- [LRC⁺10] M. Loidl, M. Rodrigues, B. Censier, S. Kowalski, X. Mougeot, P. Cassette, T. Branger, and D. Lacour. *App. Rad. Iso.*, 68(1454 – 1458), 2010.
- [Lyo10] A. Lyoussi. *Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire*. 2010.
- [LZo5] P. Lerch and A. Zehnder. *Cryogenic Particle Detection*, ed. by C. Enss *Topics in Applied Physics*, volume 99. 2005.
- [MBL12] X. Mougeot, M. M. Bé, and M. Loidl. *soumis à Phys. Rev. C*, 2012.

- [MMI00] A. Malecki and A. Micek-Ilnicka. *Surface and Coatings Technology*, 123(72 – 77), 2000.
- [Mot69] N. F. Mott. *Phil. Mag.*, 19(835), 1969.
- [Mou10a] X. Mougeot. *Radiocarbon, Proceedings of the International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry*, (249 – 257), 2010.
- [Mou10b] X. Mougeot. *note technique interne du LNHB*, 2010.
- [Mou12] X. Mougeot. *note technique interne du LNHB*, 2012.
- [OSS⁺93] T. Ohshima, H. Sakamoto, T. Sato, J. Shirai, and T. Tsukamoto. *Phys. Rev. D*, 47(11), 1993.
- [Pas03] E. Pasca. Low temperature properties of NTD-Ge : best choice for CUORE experiment. 2003.
- [PH88] N.C. Pyper and M.R. Harston. *Proceedings of the Royal Society of London A*, 420(277), 1988.
- [Pob96] F. Pobell. *Matter and Methods at Low Temperatures*. 1996.
- [RH51] M.E. Rose and D.K. Holmes. *Phys. Rev.*, 83(190), 1951.
- [RK54] M. A. Ruderman and C. Kittel. *Phys. Rev.*, 96(99 – 102), 1954.
- [RKP⁺11] P. C. Ranitzsch, S. Kempf, A. Pabinger, C. Pies, and J.-P. Porst. *Nucl. Instrum. Methods A*, 652(299 – 301), 2011.
- [Rodo7] M. Rodrigues. *Développement d’un bolomètre magnétique haute résolution en énergie pour la spectrométrie gamma appliquée à la détermination des intensités d’émission photonique*. PhD thesis, 2007.
- [SD47] F. B. Shull and D. M. Dennison. *Phys. Rev.*, 71(681), 1947.
- [Sei86] W. Seidel. *Diploma thesis, Technische Universität München*, unpublished, 1986.
- [Sir67] A. Sirlin. *Phys. Rev.*, 164(1767 – 1775), 1967.
- [Spi38] B.A Spicer. *Journal of Scientific Instruments*, 15(336), 1938.
- [TM58] J. Tousset and A. Moussa. *Le journal de physique et le radium*, 19(39), 1958.
- [Tre11] A-M. S. Tremblay. *La physique au Canada*, 67(61 – 64), 2011.

- [Tri24] R. A. Tricker. *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 22(454), 1924.
- [Twe96] D. Twerenbold. *Rep. Prog. Phys*, 59(349), 1996.
- [Vino2] A. Vinante. *Optimization of a two-stage dc SQUID for resonant gravitational wave detectors*. PhD thesis, University of Trento, Italy, 2002.
- [VP84] T. Varpula and T. Poutanen. *J. Apply. Phys*, 55(4015), 1984.
- [WH69] G. Williams and L. L. Hirst. *Phys. Rev.*, 185(407), 1969.
- [Wil82] D. H Wilkinson. *Nucl. Phys.*, 377(474 – 504), 1982.
- [WM66] C.S. Wu and S.A. Moszkowski. *Beta Decay*. John Wiley and Sons, 1966.
- [WW77] L.R. Walker and R.E. Walsted. *Phys. Rev. Lett.*, 38(514), 1977.
- [WW80] L.R. Walker and R.E. Walsted. *Phys. Rev. B*, 22(3816), 1980.